

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

**THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION**

Patent Number: JP5032902  
Publication date: 1993-02-09  
Inventor(s): HOTTA HIROSHI; others: 03  
Applicant(s): IDEMITSU PETROCHEM CO LTD; others: 01  
Requested Patent: ☐ JP5032902  
Application Number: JP19910191632 19910731  
Priority Number(s):  
IPC Classification: C08L101/02 ; C08L23/00 ; C08L25/02 ; C08L57/12  
EC Classification:  
Equivalents:

**Abstract**

**PURPOSE:** To obtain a thermoplastic resin composition having excellent impact characteristics and appearance and simultaneously reduced in coloring and free from release by blending a thermoplastic resin with an olefin-based polymer, styrene-based polymer and specific formamide group-containing copolymer.

**CONSTITUTION:** The objective resin composition obtained by blending 100 pts.wt. total amount of (A) 5-95wt.% thermoplastic resin having a functional group capable of reacting with an amino group and (B) 95-5wt.% olefin-based polymer and/styrene-based polymer with (C) 0.05-20 pts.wt. copolymer (salt) consisting of 20-99.8mol% recurring units expressed by formula I, 50-0mol% recurring units expressed by formula II and 30-0.2mol% total amount of recurring units expressed by formula III, recurring units expressed by formula IV and formula V (R<1>, R<2>, R<5>, R<6> and R<7> are H, alkyl, aryl, etc.; R<3> and R<4> are H, halogen, etc.; R<8> is direct bond, methylene, etc.; R<9> and R<10> are H, alkyl, etc.; R<11> is alkylene, etc.; R<12> is alkyl, etc.; (n) is 1-10; X<1> and X<2> are NH<sub>2</sub> or NH-CHO) and having excellent weather resistance and solvent resistance.

Data supplied from the esp@cenet database - 12

# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 05032902  
PUBLICATION DATE : 09-02-93

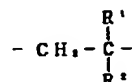
APPLICATION DATE : 31-07-91  
APPLICATION NUMBER : 03191632

APPLICANT : DAI ICHI KOGYO SEIYAKU CO LTD;

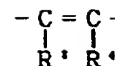
INVENTOR : OTA KATSUHISA;

INT.CL. : C08L101/02 C08L 23/00 C08L 25/02  
C08L 57/12

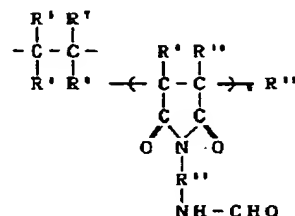
TITLE : THERMOPLASTIC RESIN  
COMPOSITION



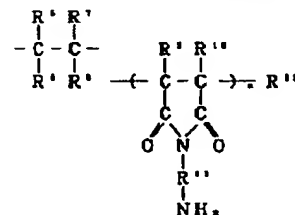
I



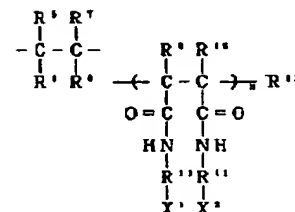
II



III



IV



V

ABSTRACT : PURPOSE: To obtain a thermoplastic resin composition having excellent impact characteristics and appearance and simultaneously reduced in coloring and free from release by blending a thermoplastic resin with an olefin-based polymer, styrene-based polymer and specific formamide group-containing copolymer.

CONSTITUTION: The objective resin composition obtained by blending 100 pts.wt. total amount of (A) 5-95wt.% thermoplastic resin having a functional group capable of reacting with an amino group and (B) 95-5wt.% olefin-based polymer and/styrene-based polymer with (C) 0.05-20 pts.wt. copolymer (salt) consisting of 20-99.8mol% recurring units expressed by formula I, 50-0mol% recurring units expressed by formula II and 30-0.2mol% total amount of recurring units expressed by formula III, recurring units expressed by formula IV and formula V (R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup> and R<sup>7</sup> are H, alkyl, aryl, etc.; R<sup>3</sup> and R<sup>4</sup> are H, halogen, etc.; R<sup>8</sup> is direct bond, methylene, etc.; R<sup>9</sup> and R<sup>10</sup> are H, alkyl, etc.; R<sup>11</sup> is alkylene, etc.; R<sup>12</sup> is alkyl, etc.; (n) is 1-10; X<sup>1</sup> and X<sup>2</sup> are NH<sub>2</sub> or NH-CHO) and having excellent weather resistance and solvent resistance.

COPYRIGHT: (C)1993,JPO&Japio

Serial No.: 376462000400  
Docket No.: 09/560,711  
Art Unit: 1643

(51)IntCl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 101/02	L S Z	7167-4 J		
23/00	L B Z	7107-4 J		
25/02	L D Z	9166-4 J		
57/12	L M H	7167-4 J		

審査請求 未請求 請求項の数2(全 35 頁)

(21)出願番号	特願平3-191632	(71)出願人	000183657 出光石油化学株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(22)出願日	平成3年(1991)7月31日	(71)出願人	000003506 第一工業製薬株式会社 京都府京都市下京区西七条東久保町55番地
		(72)発明者	堀田 寛史 京都府京都市西京区大原野西境谷町4-12-120
		(72)発明者	北澤 直樹 京都府京都市左京区大原上野町508-2
		(74)代理人	弁理士 大谷 保

最終頁に続く

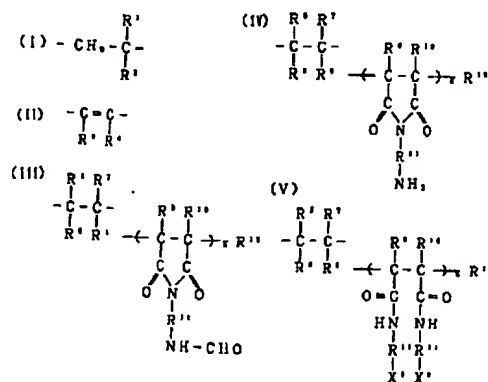
(54)【発明の名称】 熱可塑性樹脂組成物

(57)【要約】 (修正有)

【目的】 衝撃特性(特に、面衝撃特性)や外観に優れるとともに、着色が少なく剥離の生じない樹脂組成物を開発すること。

【構成】 【A】アミノ基と反応する官能基を有する熱可塑性樹脂5～95重量%と【B】オレフィン系重合体及び/又はスチレン系重合体95～5重量%との合計100重量部及び【C】分子内に(Ⅰ)単位A20～99.8モル%, (Ⅱ)単位B50～0モル%, (Ⅲ)単位C, (Ⅳ)単位D及び(Ⅴ)単位Eの合計量30～0.2モル%(ただし、単位(Ⅲ)は0.2モル%以上である。)を含有する共重合体(塩)0.05～20重量部を主成分とする。

〔R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>5</sup>R<sup>6</sup>、R<sup>7</sup>はH、アルキル、アリール等、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>はH、ハロゲン、アルキル、アルケニル、R<sup>8</sup>は直接結合、メチレン、エチレン、R<sup>9</sup>、R<sup>10</sup>はH、アルキル、アリール、R<sup>11</sup>はアルキレン、アリレン等、R<sup>12</sup>はHアルキル、nは1～10、X<sup>1</sup>、X<sup>2</sup>はNH<sub>2</sub>、NH-CHOを示す。〕

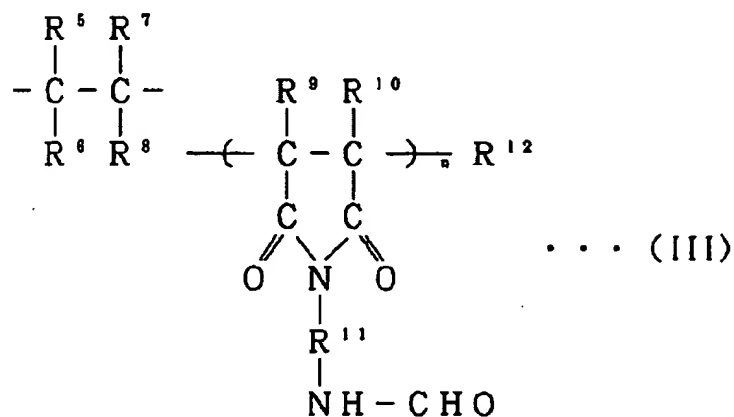
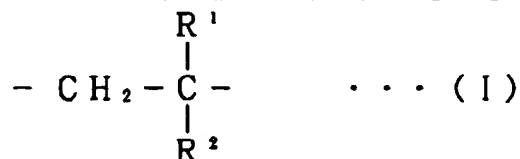


## 【特許請求の範囲】

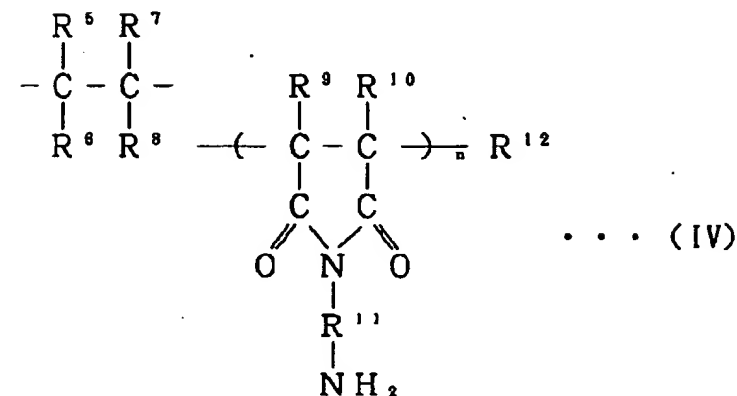
【請求項1】 (A) アミノ基と反応する官能基を有する熱可塑性樹脂5～95重量%と(B) オレフィン系重合体及び／又はスチレン系重合体95～5重量%との合計100重量部及び(C) 分子内に一般式(I)で表される反復単位I 20～99.8モル%、一般式(II)で表

される反復単位II 50～0モル%、一般式(III)で表される反復単位III、一般式(IV)で表される反復単位IV及び一般式(V)で表される反復単位Vの合計量30～0.2モル%(ただし、反復単位IIIは0.2モル%以上である。)

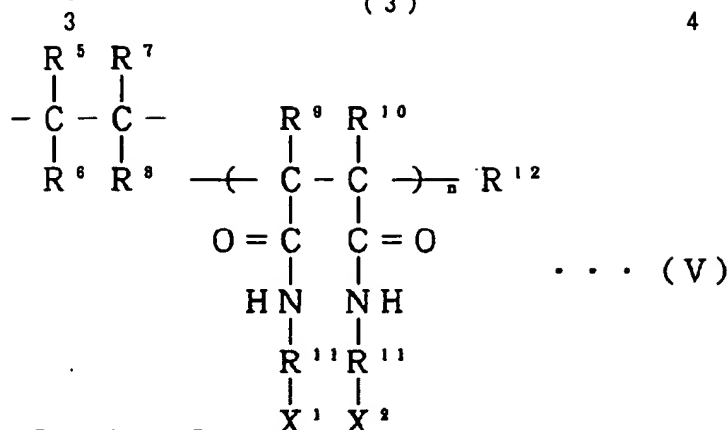
【化1】



【化2】



【化3】



(式中、 $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^5$ ,  $\text{R}^6$ 及び $\text{R}^7$ は各々独立に水素原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数3~8のシクロアルキル基、炭素数6~10のアリール基、炭素数2~4のアルケニル基、炭素数1~4のアルコキシ基、炭素数1~18のアルコシカルボニル基、炭素数1~17のアルキルカルボキシ基、炭素数1~6のアルキルカルボニル基、炭素数6~8のアリールカルボニル基、ハロゲン原子あるいはニトリル基を示し、 $\text{R}^3$ 及び $\text{R}^4$ は各々独立に水素原子、炭素数1~4のアルキル基、炭素数2~4のアルケニル基あるいはハロゲン原子を示し、 $\text{R}^8$ は存在しないか、あるいはメチレン基又はエチレン基を示し、 $\text{R}^9$ 及び $\text{R}^{10}$ は各々独立に水素原子、炭素数1~6のアルキル基あるいは炭素数6~8のアリール基を示し、 $\text{R}^{11}$ は炭素数1~12のアルキレン基、炭素数5~17のシクロアルキレン基、炭素数6~12のアリーレン基、炭素数7~12のアリールアルキレン基あるいは炭素数4~30のポリオキシアルキレン基を示し、 $\text{R}^{12}$ は水素原子あるいは炭素数1~10のアルキル基を示す。 $n$ は1~10の整数を示す。なお、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^{12}$ はそれぞれ反復単位毎に同一であっても異なってもよい。また、 $\text{X}^1$ 及び $\text{X}^2$ は各々独立に $\text{NH}_2$ あるいは $\text{NH}-\text{CHO}$ を示す。)を含有する共重合体またはその塩0.05~20重量部を主成分とする熱可塑性樹脂組成物。

【請求項2】 (A) アミノ基と反応する官能基を有する熱可塑性樹脂が、カーボネート結合、エステル結合、アミド結合及びエーテル結合から選ばれた少なくとも一種の結合を有する熱可塑性樹脂である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は熱可塑性樹脂組成物に関し、詳しくは二種あるいはそれ以上の特定の熱可塑性樹脂に新規なホルムアミド基含有共重合体を配合してなり、各樹脂間の混和性を高めるとともに面衝撃強度、アイゾット衝撃強度、外観及び色相のいずれの点においても優れた熱可塑性樹脂組成物に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 一般

に、エンジニアリングプラスチックは、機械的特性、熱的特性に優れており、近年目覚ましい発展を遂げているものの、成形加工特性及びコストの面では他の汎用樹脂に劣っている。そこで、流動性に優れ価格的にも有利なオレフィン系樹脂やスチレン系樹脂をブレンドしたりあるいはアロイ化することによって、これらの問題を解決し、併せて付随する特徴を発現させようとする研究が盛んに行われている。しかしながら、単純なブレンドでは複数の異なる樹脂が互いに混和せず、その結果、物性、特に衝撃特性の低下が著しく、剥離や外観不良といった問題が生じている。

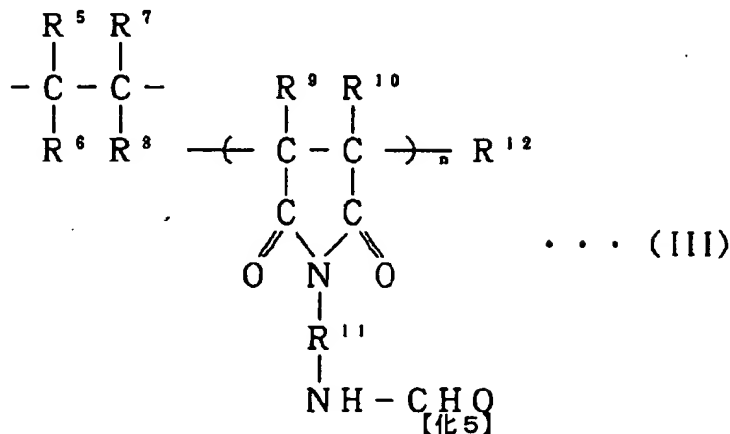
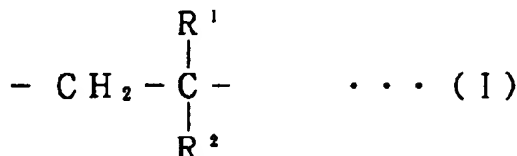
【0003】 これらの問題を解決する手法として、樹脂の混和性を向上せしめる相溶化剤の開発が、成形加工法の改良と並行して実施されてきた。それらの技術としては、例えば樹脂を変性する方法、共重合体を添加する方法、反応性を有する樹脂又は反応性の試薬を用いて押出機中で反応させる方法またそれらを複合的に用いる方法などがある。具体的には、ポリカーボネートに対して、例えば特開昭59-223749号公報に示されるように、無水マレイン酸で変性したポリプロピレンを加えて相溶性を改良し、表面剥離を抑制する方法が提案されている。しかしながら、この手法では衝撃強度の低下が著しく、ポリカーボネートの特性が失われる上に剥離の抑制効果も充分とはいえない。また、特開昭63-215714号公報、同63-215749号公報や同63-215750号公報等には、ポリカーボネートとポリプロピレンに対して、反応性のポリカーボネート変性体と反応性のポリプロピレン変性体を混合し、相互に反応させて相溶性を向上させる方法が開示されている。しかし、この方法でも衝撃強度の低下や剥離の問題は十分に解決していない。

【0004】 さらに、特開平2-36248号公報では、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリエステル、ポリエーテルとポリオレフィンとのブレンドに対してアミノ基を有する重合体を添加し、更に必要によりポリウレタンを添加することで、剥離及びアイゾット衝撃強度の改良が試みられている。これらの改質の目的は、相互の長所を巧みに組み合わせる新たな特徴ある材料を提供することにある。しかしながら、上記何れの方法でも混和

性が不充分であり、未だに上述したブレンドに起因する問題点は十分に解決されていない。樹脂製品表面の剥離、外観不良に関しても充分とはいえないが、特に衝撃特性に関して不充分と考えられる。例えば衝撃特性評価は、一般にアイゾット衝撃試験による評価がなされるが、アイゾット衝撃強度は大きくても、実用面では有用な面衝撃特性が悪いことがしばしばあり、真に衝撃特性の優れた材料である為にはアイゾット衝撃強度と面衝撃特性の双方が優れたものであることが必要である。

【0005】本発明者らは、かかる従来の公知技術のもつ欠点を改良する方法を先に提案した(特願平3-085738)。即ち、カーボネート結合、エステル結合、アミド結合、エーテル結合を有する樹脂とオレフィン及び/又はスチレン系樹脂とのブレンド物に対してゲル成分の少ないアミノ基を有する重合体を添加することで、樹脂間の混和性を高め、表面の剥離を防止し、外観に優れ且つアイゾット衝撃強度と面衝撃特性の良好な樹脂組成物が得られることを提案した。しかしながら、この方法では得られる組成物が着色するという問題点を有していた。

【0006】



【0009】

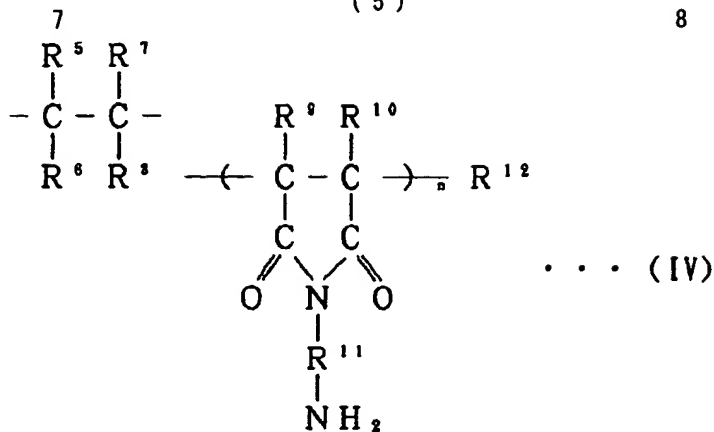
【課題を解決するための手段】本発明者らは、このような背景を鑑みて鋭意検討した結果、エンジニアリングプラスチック等の熱可塑性樹脂とオレフィン系重合体及び/又はスチレン系重合体とを、ホルムアミド基を持つ新規な共重合体と熔融混練することにより、衝撃特性(特に、面衝撃特性)や外観に優れるとともに、着色が少なく剥離の生じない樹脂組成物が得られることを見出した。本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

【0007】すなわち本発明は、〔A〕アミノ基と反応する官能基を有する熱可塑性樹脂5~95重量%と

〔B〕オレフィン系重合体及び/又はスチレン系重合体95~5重量%との合計100重量部及び〔C〕分子内に一般式(I)で表される反復単位120~99.8モル%、一般式(II)で表される反復単位1150~0モル%、一般式(III)で表される反復単位111、一般式(IV)で表される反復単位IV及び一般式(V)で表される反復単位Vの合計量30~0.2モル%(ただし、反復単位111は0.2モル%以上である。)

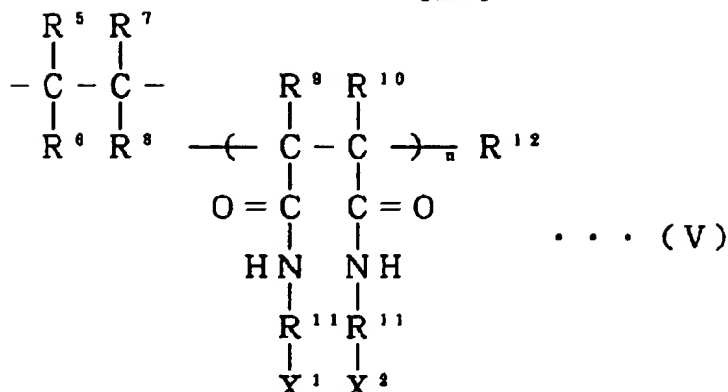
【0008】

【化4】



【0010】

【化6】



【0011】（式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 及び $\text{R}^7$ は各々独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数3～8のシクロアルキル基、炭素数6～10のアリール基、炭素数2～4のアルケニル基、炭素数1～4のアルコキシ基、炭素数1～18のアルコキシカルボニル基、炭素数1～17のアルキルカルボキシル基、炭素数1～6のアルキルカルボニル基、炭素数6～8のアリールカルボニル基、ハロゲン原子あるいはニトリル基を示し、 $\text{R}^3$ 及び $\text{R}^4$ は各々独立に水素原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数2～4のアルケニル基あるいはハロゲン原子を示し、 $\text{R}^8$ は存在しないか、あるいはメチレン基又はエチレン基を示し、 $\text{R}^9$ 及び $\text{R}^{10}$ は各々独立に水素原子、炭素数1～6のアルキル基あるいは炭素数6～8のアリール基を示し、 $\text{R}^{11}$ は炭素数1～12のアルキレン基、炭素数5～17のシクロアルキレン基、炭素数6～12のアリーレン基、炭素数7～12のアリールアルキレン基あるいは炭素数4～30のポリオキシアルキレン基を示し、 $\text{R}^{12}$ は水素原子あるいは炭素数1～10のアルキル基を示す。 $n$ は1～10の整数を示す。なお、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^{12}$ はそれぞれ反復単位毎に同一であっても異なってもよい。また、 $\text{X}^1$ 及び $\text{X}^2$ は各々独立に $\text{NH}_2$ あるいは $\text{NH}-\text{CHO}$ を示す。)を含有する共重合体またはその塩0.05～20重量部を主成分とする熱可塑性樹脂組成物を提供するものである。

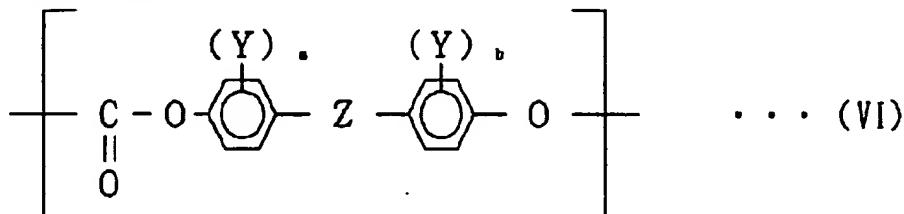
【0012】本発明の組成物は、上記の如く【A】、【B】及び【C】成分よりなるものである。ここで【A】成分はアミノ基と反応する官能基を有していれば

よい。即ち【C】成分に含まれるホルムアミド基は、熔融混練時の熱により脱一酸化炭素反応を起こし、ホルムアミドを有する共重合体はアミノ基を有する共重合体へと変化すると考えられる。従って、【C】成分より生成すると考えられるアミノ基と反応する官能基を有するものであれば本発明に於ける【A】成分として使用可能である。更に熔融混練時に、【C】成分は、反応性の高いアミノ基となり【A】成分と速やかに反応するため、着色等の副反応が生じにくいと考えられる。従って、熔融混練時にアミノ基を有する（重合体）試薬を用いるよりも着色が少ないと考えられる。具体的なアミノ基と反応する官能基としては、カルボン酸、その他の有機酸、それらのエステルや塩あるいは酸無水物やその塩からなる基、さらには水酸基、チオール、オキサゾリン基、エポキシ基、イソシアナート基、アミド結合、カーボネート結合、ウレタン結合、尿素結合、エーテル結合などがある。【A】成分としては、それらのうち、特にカーボネート結合、エステル結合、アミド結合及びエーテル結合から選ばれた少なくとも一種の結合を有する熱可塑性樹脂が好適に使用される。

【0013】上記【A】成分として用いられるカーボネート結合を有する熱可塑性樹脂の代表的なものとしてはポリカーボネート樹脂があり、脂肪族、芳香族いずれのポリカーボネート樹脂であってもよい。また、分子量については特に制限はないが、得られる組成物の成形性や物性を考慮すると、数平均分子量として1万～10万、好ましくは1万～4万である。このポリカーボネート樹



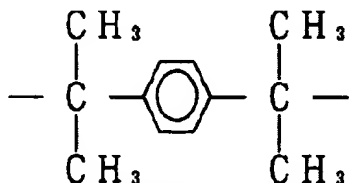
脂の末端基は、通常の一価のフェノール末端（フェノール、ハロゲン置換フェノール、アルキル置換フェノール（クミルフェノール、オクチルフェノール）、その他各種置換フェノール）であればよい。また、上述のアミノ基と反応性を有する官能基や結合を、グラフト、ブロック、ランダム共重合の形で若しくは分子末端に導入したポリカーボネート樹脂でもよい。さらに、改質や補強を目的として、エラストマー、フィラー、種々の添加剤等を、重合時又は重合後に添加したものでもよい。このよ



【0016】で表される繰り返し単位を有する重合体である。ここで、Zは単なる結合を示すかあるいは炭素数1～8のアルキレン、炭素数2～8のアルキリデン、炭素数5～15のシクロアルキレン、炭素数5～15のシクロアルキリデン、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{SO}$ 、 $\text{O}$ 、 $\text{CO}$ または式

【0017】

【化8】



【0018】で表される基を意味する。また、Yは水素、塩素もしくは臭素原子または1～8個の炭素原子を有する飽和アルキル基を示し、a及びbは0～4の数を示す。

【0019】このポリカーボネート樹脂は、例えば溶媒法、すなわち塩化メチレン等の溶媒中で公知の酸受容体、分子量調整剤の存在下、二価フェノールとホスゲンの如きカーボネート前駆体との反応または二価フェノールとジフェニルカーボネートの如きカーボネート前駆体とのエステル交換反応によって製造することができる。ここで、好適に使用し得る二価フェノールとしてはビスフェノール類があり、特に2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン〔通称ビスフェノールA〕が好ましい。また、ビスフェノールAの一部または全部を他の二価フェノールで置換したものであってもよい。ビスフェノールA以外の二価フェノールとしては、例えばヒドロキノン；4, 4'-ジヒドロキシジフェニル；ビス(4-ヒドロキシフェニル)アルカン；ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロアルカン；ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルフィド；ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン；ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホキシド；ビス(4-ヒドロキシフェニル)エーテルのような化合物またはビス(3, 5-ジブromo-4-ヒド

ロ)なポリカーボネート樹脂は、様々な公知の方法で製造することができる。例えば、ホスゲン法、エステル交換法、熔融重合法など様々な方法を適用することができる。

【0014】上記ポリカーボネート樹脂には、各種のものがあるが、例えば一般式(VI)

【0015】

【化7】

キシフェニル)プロパン；ビス(3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパンのようなハロゲン化ビスフェノール類をあげることができる。これら二価フェノールは二価フェノールのホモポリマーまたは2種以上のコポリマー若しくはブレンド物であってもよい。更に、このポリカーボネート樹脂は、多官能性芳香族化合物を二価フェノールおよび/またはカーボネート前駆体と反応させた熱可塑性ランダム分岐ポリカーボネートであってもよい。上記のポリカーボネート樹脂以外のカーボネート結合を有する熱可塑性樹脂としては、ポリアリレート樹脂、ポリエステルポリカーボネート樹脂等があり、好適に使用される。

【0020】上記〔A〕成分として用いられる樹脂には、カーボネート結合を有する樹脂の他に、エステル結合を有する熱可塑性樹脂、つまりポリエステル樹脂をあげることができる。このポリエステル樹脂の種類は特に制限されず、各種のものを使用することができる。脂肪族、芳香族いずれのポリエステル樹脂であってもよいが、物性面より後者の方が好ましい。また、分子量については、使用目的等に応じて適宜選定すればよいが、通常は固有粘度で0.2～2.0 dl/g、好ましくは0.5～1.2 dl/gである。さらに、このポリエステル樹脂の末端は、カルボン酸末端、アルコール性水酸基末端であってもよく、その比は特に制限ないが、9/1～1/9が好ましい。また、上述のアミノ基と反応性を有する官能基や結合を、グラフト、ブロック、ランダム共重合の形で若しくは分子末端に導入したポリエステル樹脂であってもよい。その他に、改質や補強を目的として、エラストマー、フィラー、種々の添加剤等を、重合時又は重合後に添加したものでもよく、ジカルボン酸成分を、物性を損なわない範囲で2種以上含んだポリエステル樹脂であっても差支えない。このようなポリエステル樹脂は、様々な公知の方法で製造することができ、またその種類としては多種多様のものをあげることができる。

【0021】本発明で使用することのできるポリエステ

ル樹脂の具体例をあげれば、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリブチレンテレフタレート (PBT)、ポリシクロヘキサジメチレンテレフタレート (PCT)、さらにはポリアリレートなどが挙げられ、特にポリエチレンテレフタレートが好ましい。ポリエチレンテレフタレートとしては、テレフタル酸を主たるものとする芳香族ジカルボン酸成分及びエチレングリコール成分を主たる成分とするグリコール成分よりなるポリエステル、あるいはその他のジカルボン酸成分及びグリコール成分を共重合したポリエステルであってもよい。

【0022】上記〔A〕成分として用いられる樹脂には、アミド結合を有する熱可塑性樹脂、つまりポリアミド樹脂をあげることができる。このポリアミド樹脂の種類は特に制限されず、各種のものを使用することができる。脂肪族、芳香族いずれのポリアミド樹脂であってもよい。また、分子量については特に制限はないが、得られる組成物の成形性や物性を考慮すると、数平均分子量として4千～5万、好ましくは5千～3万である。さらに、上述のアミノ基と反応性を有する官能基や結合を、グラフト、ブロック、ランダム共重合の形で若しくは分子末端に導入したポリアミド樹脂であってもよい。その他に、改質や補強を目的として、エラストマー、フィラー、種々の添加剤等を、重合時又は重合後に添加したものでも差支えない。このようなポリアミド樹脂は、様々な公知の方法で製造することができる。例えば、三員環以上のラクタム、重合可能な $\omega$ -アミノ酸、二塩基酸とジアミン等の開環(共)重合や(共)重縮合等によって製造することができ、より具体的には、 $\epsilon$ -カプロラクタム、アミノカプロン酸、11-アミノウンデカン酸等の(共)重合、あるいはヘキサメチレンジアミン、ノナメチレンジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、メタキシリレンジアミン等のジアミンとテレフタル酸、イソフタル酸、アジピン酸、セバシン酸、ドデカン二塩基酸、グルタル酸等のジカルボン酸との(共)重縮合等によればよい。

【0023】上述のポリアミド樹脂としては、様々なものを充当することができるが、その具体例をあげれば、ナイロン6(ポリアミド6)；ナイロン6, 6；ナイロン6, 10；ナイロン11；ナイロン12；ナイロン6, 12；ナイロン4, 6などの脂肪族ポリアミド、ナイロン6/6, 6；ナイロン6/6, 10；ナイロン6/6, 12などの脂肪族共重合ポリアミド、ポリヘキサメチレンジアミンテレフタルアミド、ポリヘキサメチレンジアミンイソフタルアミド、キシレン基含有ポリアミド(例えばナイロン-MXD(メタキシリレンジアミン))などの芳香族ポリアミド等がある。さらには、ポリエステルアミド、ポリエーテルアミド、ポリエステルエーテルアミド等をあげることができる。これらのうちで、特にナイロン6やナイロン6, 6が好ましい。

【0024】上記〔A〕成分として用いられる樹脂とし

ては、更にエーテル結合を有する熱可塑性樹脂、つまりポリエーテル樹脂をあげることができる。このポリエーテル樹脂の種類は特に制限されず、各種のものを使用することができる。脂肪族、芳香族いずれのポリエーテル樹脂であってもよい。また、分子量については特に制限はないが、得られる組成物の成形性や物性を考慮すると、数平均分子量として3万～30万、好ましくは5万～10万である。さらに、上述のアミノ基と反応性を有する官能基や結合を、グラフト、ブロック、ランダム共重合の形で若しくは分子末端に導入したポリエーテル樹脂であってもよい。その他に、改質や補強を目的として、エラストマー、フィラー、種々の添加剤等を、重合時又は重合後に添加したものでも差支えず、また共重合成分を含んでいてもよい。

【0025】上述のポリエーテル樹脂としては、様々なものがあるが、例えばポリオキシメチレン(POM)等のポリアセタール単独重合体やトリオキサン-エチレンオキサイド共重合体のようなポリエーテルの単位成分の混在したポリアセタール共重合体、ポリフェニレンエーテル(PPE)、エーテル基とスルホン基を混在させたポリエーテルスルホン(PES)、エーテル基とカルボニル基の混在したポリエーテルケトン(PEK)、またチオエーテル基を有するポリフェニレンサルファイド(PPS)やポリスルホン(PSO)などに大別することができる。このうち、ポリアセタール(ポリオキシメチレン(POM))及びポリフェニレンエーテル(PPE)が好ましい。ここで、ポリアセタール単独重合体は、オキシメチレン単位を分子主鎖とする重合体であり、ホルムアルデヒドやトリオキサンを単独重合させることによって製造することができる。一方、ポリアセタール共重合体は、上記オキシメチレン単位よりなる連鎖中に、オキシエチレン単位、オキシプロピレン単位、オキシテトラメチレン単位等のオキシアルキレン単位やオキシフェニルエチレン単位等をランダムに混在させたものであり、ホルムアルデヒドやトリオキサンとエチレンオキサイドなどの環状エーテルを共重合させることによって製造することができる。

【0026】本発明の熱可塑性樹脂組成物では、〔A〕成分として上記樹脂を一種あるいは二種以上混合して用いられるが、一方〔B〕成分としては、オレフィン系重合体、スチレン系重合体あるいはこれらの混合物が用いられる。ここで、オレフィン系重合体は、ポリオレフィン成分を含む樹脂であれば特に制限はなく、各種のものを使用することができる。具体的なポリオレフィン樹脂としては、ポリエチレン(線状低密度ポリエチレン(LLDPE)、低密度ポリエチレン(LDPE)、超低密度ポリエチレン(VLDPE)、高密度ポリエチレン(HDPE))、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリイソブテン等やエチレン-プロピレン共重合体、エチレン-プロピレン共重合体ゴム(EPR)、エチレン-ブテ

ン共重合体 (EBM), EPDM, エチレン-プロピレン-ブテン共重合体, エチレン-ブチレン共重合体等のエチレン- $\alpha$ -オレフィン共重合体、プロピレン-ブテン共重合体等のプロピレンと他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体、さらには各種エチレン系共重合体 (エチレン-酢酸ビニル共重合体 (EVA), エチレン-ビニルアルコール共重合体 (EVOH), エチレン-無水マレイン酸共重合体, エチレン-アルキル (メタ) アクリレート共重合体など) やポリ (4-メチル-1-ペンテン) 等、またはこれらの混合物が含まれる。ここで言う共重合体とはランダム、ブロック、ランダムブロック共重合体、さらにはグラフト共重合体を包含する。なお、上記オレフィン系重合体の分子量については、各種の状況に応じて適宜選定すればよいが、通常は数平均分子量として0.5万~30万、好ましくは1万~20万である。

【0027】また、〔B〕成分としてのスチレン系重合体については、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、p-メチルスチレン等のスチレン成分を含むものであれば、各種のものがあ、特に制限はないが、例えば汎用ポリスチレン (GPPS), 高衝撃性ポリスチレン (HIPS), シンジオタクチックポリスチレン (SPS), スチレン-マレイン酸共重合体 (SMA), スチレン-マレイミド共重合体, ゴム強化SMA, MS樹脂, AS樹脂, ABS樹脂 (高耐熱ABS樹脂, AAS樹脂, AES樹脂を含む) 等が挙げられ、更には、所謂スチレン系熱可塑性エラストマーであるSEBS樹脂, SEPS樹脂, SEP樹脂及びその誘導体を挙げることもできる。なお、上記スチレン系重合体の分子量については、各種の状況に応じて適宜選定すればよいが、通常は数平均分子量として2万~30万、好ましくは3万~20万である。

【0028】本発明の組成物において、上記〔A〕成分と〔B〕成分の割合は、〔A〕:〔B〕=5~95:95~5 (重量%)、好ましくは30~95:70~5 (重量%) である。ここで、〔A〕, 〔B〕成分の混合割合が上記範囲を逸脱し、〔A〕成分が多過ぎると成形性が悪化し、〔B〕成分が多過ぎると剛性などの機械的強度が不足するという不都合が生ずる。

【0029】また、本発明の組成物は、上記〔A〕, 〔B〕成分とともに、〔C〕成分であるホルムアミド基を有する共重合体を含有する。このホルムアミド基を有する共重合体は、一般式 (I) で表される反復単位 I, 一般式 (II) で表される反復単位 II, 一般式 (III) で表される反復単位 III, 一般式 (IV) で表される反復単位 IV 及び一般式 (V) で表される反復単位 V を有する新規な共重合体 (ただし、反復単位 II, IV 及び V については、必須ではない。) であり、これらの反復単位のランダム、ブロックあるいはグラフト共重合体である。この共重合体における各反復単位の含有割合は、上述したように反復単位 I, II, III, IV, V の合計量に対して、反

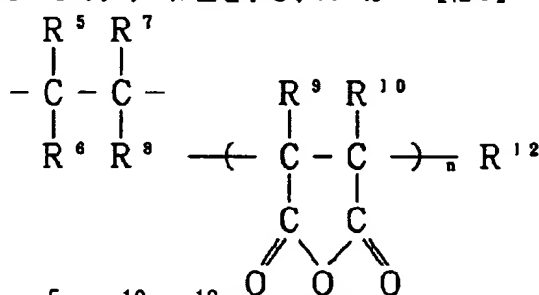
復単位 I を20.0~99.8モル%、好ましくは60.0~99.5モル%、反復単位 II を50.0~0.0モル%、好ましくは40.0~0.0モル%、反復単位 III, 反復単位 IV 及び反復単位 V の合計量30~0.2モル% (ただし、反復単位 III は0.2モル%以上である。また、反復単位 IV 及び V は0であってもよい。)、好ましくはIII を20.0~0.5モル%、IV を19.5~0.0モル%、V を19.5~0.0モル%とする。ここで、反復単位 III, IV, V の合計量の含有割合が、0.2モル%未満の場合、添加効果が発現せず、一方30モル%を超えると〔C〕成分の分散が悪くなり、その結果、得られる組成物の物性、特に面衝撃強度が低下する。なお、この〔C〕成分であるホルムアミド基含有共重合体は、基本的には上記反復単位 I ~ V からなるものであるが、更に他の反復単位を若干量含有することもできる。

【0030】また、〔C〕成分は、その分子量については特に制限はないが、通常は粘度平均分子量3000~50000である。これは、トルエン、キシレン、クメン、テトラリン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド、アセトン、メチルエチルケトン等の良溶媒に、アミノ基含有共重合体を10重量%で溶解したときの粘度が10~50000 cps の範囲であることに相当する。この〔C〕成分である共重合体は、反復単位 III の側鎖にイミド基を介してホルムアミド基を有する点に特徴がある。またこの共重合体は、上記ホルムアミド基が硫酸、ベンゼンスルホン酸、トルエンスルホン酸、ナフタレンスルホン酸等のスルホン酸類、塩酸、フッ化水素酸、臭化水素酸、ヨウ化水素酸等のハロゲン酸、硝酸、ホウ酸、リン酸等の酸と結合して塩を形成したものをも包含する。

【0031】ここで、反復単位 I は一般式 (I) で表されるものであるが、式中 $R^1$  及び $R^2$  は各々独立に (つまり、 $R^1$  と $R^2$  は同じでも異なってもよい) 水素原子、炭素数1~10のアルキル基 (好ましくは炭素数1~4のアルキル基)、炭素数3~8のシクロアルキル基 (好ましくは炭素数3~6のシクロアルキル基)、炭素数6~10のアリール基 (好ましくは炭素数6~9のアリール基)、炭素数2~4のアルケニル基、炭素数1~4のアルコキシ基、炭素数1~18のアルコキシカルボニル基 (好ましくは炭素数1~8のアルコキシカルボニル基)、炭素数1~17のアルキルカルボキシル基 (好ましくは炭素数1~3のアルキルカルボキシル基)、炭素数1~6のアルキルまたはアリールカルボニル基 (好ましくは炭素数1~4のアルキルカルボニル基)、炭素数6~8のアルキルカルボキシル基、ハロゲン原子 (好ましくは塩素、臭素) あるいはニトリル基を示す。なお、 $R^1$  及び $R^2$  は、それぞれ反復単位ごとに同一であっても異なってもよい。即ち、上記一般式 (I) は、反復単位 I の一つがエチレン単位 ( $R^1$  及び $R^2$  が共に水素) であり、また反復単位 I の他の一つがプロピレン単

位 ( $R^1$  が水素,  $R^2$  がメチル基) のような場合も包含する。

【0032】また、反復単位IIは一般式(II)で表されるものであるが、式中、 $R^3$  及び  $R^4$  は各々独立に水素原子、炭素数1~4のアルキル基(メチル基、エチル基等)、炭素数2~4のアルケニル基(ビニル基、アリル基等)あるいはハロゲン原子(塩素、臭素等)を示す。なお、 $R^3$  及び  $R^4$  は、それぞれ反復単位ごとに同一であっても異なってもよいことは、前述の  $R^1$  及び  $R^2$  の場合と同様である。さらに、反復単位III, IV, Vはそれぞれ一般式(III), (IV), (V)で表されるものであり、ここで  $R^5 \sim R^7$  は前記  $R^1$ ,  $R^2$  と同様に、各々独立に水素原子、炭素数1~10のアルキル基(好ましくは炭素数1~4のアルキル基)、炭素数2~4のアルケニル基(ビニル基、アリル基等)、炭素数3~8のシクロアルキル基(好ましくは炭素数3~6のシクロアルキル基)、炭素数6~10のアリール基(好ましくは炭素数6~9のアリール基)、炭素数1~4のアルコキシ基、炭素数1~18のアルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数1~8のアルコキシカルボニル基)、炭素数1~17のアルキルカルボキシル基(好ましくは炭素数1~3のアルキルカルボキシル基)、炭素数1~6のアルキルカルボニル基、炭素数6~8のアリールカルボニル基(好ましくは炭素数1~4のアルキルカルボニル基)、ハロゲン原子(好ましくは塩素、臭素)あるいはニトリル基を示す。また、 $R^8$  は存在しない(即ち単なる結合を示す)か又はメチレン基あるいはエチレン基を示し、 $R^9$  及び  $R^{10}$  は各々独立に水素原子、炭素数1~6のアルキル基(好ましくは炭素数1~2のアルキル基)あるいは炭素数6~8のアリール基を示し、 $R^{11}$  は



【0035】〔式中、 $R^5 \sim R^{10}$ ,  $R^{12}$  及び  $n$  は前記と同じである。〕を含有する共重合体に、一般式(VIII)  $H_2N-R^{11}-NH_2$  ... (VIII)

〔式中、 $R^{11}$  は前記と同じである。〕で表されるジアミンの塩をホルムアミド類の存在下に反応させた後、塩基と接触させて脱酸することによって、効率よく製造することができる(方法(a))。また、分子内に一般式(I)で表される反復単位I 20~99.8モル%, 一般式(II)で表される反復単位II 50~0.0モル%及び一般式(VII)で表される反復単位VII 30~0.2モル%を含有する共重合体と一般式(VIII)で表されるジアミンと、ホルミル基含有化合物から選ばれたうちの一種を反

炭素数1~12のアルキレン基(好ましくはメチレン、エチレン、プロピレン、テトラメチレン、ヘキサメチレン等の炭素数1~8のアルキレン基)、炭素数5~17のシクロアルキレン基(好ましくはシクロヘキシレン、メチレンシクロヘキシルメチレン等の炭素数6~10のシクロアルキレン基)、炭素数6~12のアリーレン基(好ましくはフェニレン、オキシジフェニレン等)、炭素数7~12のアリールアルキレン基(好ましくはキシリレン等の炭素数8~10のアリールアルキレン基)あるいは炭素数4~30のポリオキシアルキレン基(ポリオキメチレン、ポリオキプロピレンなどの炭素数4~15のポリオキシアルキレン基)を示し、 $R^{12}$  は水素原子あるいは炭素数1~10のアルキル基(好ましくは炭素数1~8のアルキル基)を示す。これらの  $R^5 \sim R^{12}$  は、それぞれ反復単位ごとに同一であっても異なってもよいことは、前述の  $R^1$  及び  $R^2$  の場合と同様である。また、 $n$  は1~10(好ましくは1~3)の整数を示す。ここで  $n$  が複数、つまり2以上のときは、 $n$  の数だけ存在する各  $R^9$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{11}$  は、同じものでも異なるものでもよい。また、反復単位V中の  $X^1$  及び  $X^2$  はそれぞれ共に  $NH_2$  及び/又は  $NH-CHO$  を示す。

【0033】本発明の〔C〕成分である共重合体を製造するには、特に制限はなく、様々な方法によることができるが、下記の方法(a), (b)によれば、一層効率よく製造することができる。即ち、分子内に一般式

(I)で表される反復単位I 20~99.8モル%, 一般式(II)で表される反復単位II 50~0.0モル%及び一般式(VII)で表される反復単位VII 30~0.2モル%

【0034】

【化9】

応させて得られる反応生成物を反応させることによって上記〔C〕成分であるホルムアミド基を含有する共重合体を効率よく製造することができる(方法(b))。

【0036】まず、このホルムアミド基含有共重合体を製造するための原料である反復単位I, II及びVIIを含有する共重合体は、一般式(I), (II)及び(VII)で表される反復単位を与えるモノマーを、公知の手法によりラジカル重合又はイオン重合することによって製造される。一般式(I)の反復単位Iを与えるモノマーの具体例としては、様々なものがあるが、例えばエチレン、プロピレン、1-ブテン、1-オクテン、イソブチレン等のオレフィン、シクロペンテン、シクロヘキセン、シ

クロオクテン等の環状オレフィン、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、ビニルトルエン、*p*-*t*-ブチルスチレン等のスチレン類（芳香族ビニル化合物）、酢酸ビニル、酪酸ビニル、ステアリン酸ビニル等のビニルエステル類、メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル等のビニルエーテル類、塩化ビニル、塩化ビニリデン等のハロゲンオレフィン、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、ヘキシル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、デシル（メタ）アクリレート、オクタデシル（メタ）アクリレート、メトキシエチル（メタ）アクリレート等のアクリル酸又はメタアクリル酸エステル類、アクリロニトリル、メタクリロニトリル等のニトリル類、メチルビニルケトン、フェニルビニルケトン等のビニルケトン等があり、これらを単独であるいは二種以上を組み合わせて使用することができる。これらのうち、好ましいモノマーの例としては、エチレン、プロピレン、スチレン、メチルビニルエーテル、イソブチレン、酢酸ビニル、（メタ）アクリル酸エステル類等を挙げることができる。

【0037】一般式（II）の反復単位IIを与えるモノマーの具体例としては、ブタジエン、イソブレン、クロロブレン等の共役ジエンがあり、これを単独あるいは二種以上を組合わせて使用することができる。好ましいモノマーとしては、ブタジエン、イソブレン等を挙げることができる。一般式（VII）の反復単位VIIは、上記反復単位Iを与えるモノマーと反復単位IIを与えるモノマーを、公知の方法により共重合し、得られた共重合体を、公知の過酸化化合物又は開始剤等を用いて、無水マレイン酸、無水メチルマレイン酸、1, 2-ジメチルマレイン酸、無水エチルマレイン酸、無水フェニルマレイン酸、無水イタコン酸等の不飽和ジカルボン酸無水物をグラフト反応することにより形成することができる。好ましいグラフト化モノマーは無水マレイン酸である。ここで、グラフト反応は無水マレイン酸等のグラフト化モノマーが反復単位I又はIIの部分に結合することによって進行する。なお、この反復単位VIIを含む本発明に用いる原料共重合体として、上記不飽和ジカルボン酸無水物がグラフトした重合体として市販されている重合体（マレイン酸変性EPRやマレイン酸変性SEBS等）を充当することも可能である。

【0038】以上より、本発明の方法の原料である反復単位I、II及びVIIを含有する共重合体を例示すれば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリイソブレン及びその水素添加物、ポリブタジエン及びその水素添加物、クロロブレンゴム及びその水素添加物、ニトリルゴム及びその水素添加物、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-（メタ）アクリル酸エステル共重合体、スチレン-イソブレン共重合体及びその水素添加物、スチレン-ブタジエン共重合体及びその水素添加物等の重合体又は

共重合体（尚、共重合体にあつては、ランダム共重合体、ブロック共重合体、交互共重合体のずれであってもよい）に、無水マレイン酸、無水メチルマレイン酸、無水エチルマレイン酸、無水イタコン酸等の不飽和ジカルボン酸の無水物をグラフト反応して得られる共重合体等を挙げることができる。しかし、これらの例示に限定されるべきものではない。

【0039】また、上記方法（a）によれば、上記のようにして製造された反復単位I、II及びVIIを含有する共重合体を、ホルムアミド、ギ酸及びそれらの誘導体から選ばれた少なくとも1種のホルミル基含有化合物の存在下で、一般式（VIII）で表される第一級ジアミンの塩と反応させる。ここで用いるホルミル基含有化合物は、上述したように、ホルムアミド、ギ酸あるいはそれらの誘導体であり、市販のものが利用できる。このホルムアミドの誘導体としては、N-メチルホルムアミド；N-エチルホルムアミド；N-ブチルホルムアミド；N, N-ジメチルホルムアミド；N, N-ジエチルホルムアミド；N-メチルホルムアニリド；N-エチルホルムアニリド等の窒素置換ホルムアミド等を挙げることができる。また、ギ酸の誘導体としては、ギ酸メチル、ギ酸エチル、ギ酸プロピル、ギ酸ブチル等のギ酸エステル、あるいはギ酸ナトリウム、ギ酸カリウム、ギ酸アンモニウム等のギ酸の塩等を挙げることができる。これらのホルムアミド類は、溶媒としての作用の他に反応試薬として作用する。

【0040】また、一般式（VIII）で表されるジアミンの具体例としては、エチレンジアミン；1, 3-ジアミノプロパン；1, 4-ジアミノブタン；1, 5-ジアミノペンタン；ヘキサメチレンジアミン；1, 7-ジアミノヘプタン；1, 8-ジアミノオクタン；1, 9-ジアミノノナン；1, 10-ジアミノデカン；2, 2, 5-トリメチルヘキサレンジアミン；2, 2, 4-トリメチルヘキサレンジアミン等の直鎖又は分岐の脂肪族のアルキレンジアミン類、イソホロレンジアミン；1, 3-ビス（アミノメチル）シクロヘキサン；ビス（4-アミノシクロヘキシル）メタン；ビスアミノメチルヘキサヒドロー4, 7-メタンインダン；1, 4-シクロヘキサレンジアミン；1, 3-シクロヘキサレンジアミン；2-メチルシクロヘキサレンジアミン；4-メチルシクロヘキサレンジアミン；ビス（4-アミノ-3, 5-ジメチルシクロヘキシル）メタン等の脂環式ジアミン類、*m*-キシリレンジアミン；*p*-キシリレンジアミン等のアリールアルキルジアミン、ポリオキシプロピレンジアミン；ポリオキシエチレンジアミン等のポリオキシアリレンジアミンが例示できる。このうち、特に好ましいものは、脂肪族及び脂環式ジアミンである。このジアミンは、部分中和塩（モノ塩）あるいは完全中和塩（ジ塩）のいずれであってもよいが、部分中和塩を用いた方法が反応効率が高く好ましい。上記ジアミンは、好ましくは酸の部分中和塩

として用いられるが、そのような酸としては、その酸強度としてカルボン酸より大きいものを選択することが望ましい。具体例を例示すれば、硫酸、ベンゼンスルホン酸、トルエンスルホン酸、ナフタレンスルホン酸等のスルホン酸類、塩酸、フッ化水素酸、臭化水素酸、ヨウ化水素酸等のハロゲノ酸、硝酸、ホウ酸、リン酸等がある。これらのうち塩酸やトルエンスルホン酸が好ましい。

【0041】ジアミンの塩を製造するにあたっては、上記ジアミンと上記酸のモル比は、ジアミンの全アミノ基を基準にして酸の当量で50～100%の中和度に相当する塩の形で用いられる。50%未満の場合、イミド化反応時に架橋、ゲル化が避けられない。又100%を超えると、イミド化反応に長時間を要し経済的に不利となる。好ましい範囲は50～80%である。ジアミンの塩は、相当するジアミンと相当する酸の中和反応により容易に調製することができる。例えば、酸のアルコール溶液に、ジアミンを滴下し必要に応じ濃縮、アルコールで再結晶して単離して原料として用いてもよいし、また、本発明の必須成分であるホルミル基含有化合物あるいは1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン(DMI)；N-メチル-2-ピロリドン；ジメチルスルホキシド(DMSO)；ジメチルスルホン；ジオキサン；1, 2-ジメトキシエタン；ヘキサメチレンリン酸-トリアミド；テトラメチル尿素のような非プロトン性極性溶媒中でジアミンと酸の部分中和塩を形成させて、そのまま反応に用いてもよい。操作上、ホルミル基含有化合物中で塩を形成させて、そのまま反応に用いる方が効率的で好ましい。上記方法(a)では、その後、上述の如くして得られた反応生成物を塩基と接触させて脱酸すればよい。

【0042】〔C〕成分の共重合体を得るために、今一つ提供できる方法は、一般式(VIII)で表されるジアミンと前述のホルミル基含有化合物を反応させて得られる反応生成物を反応試薬として用い、前記反復単位I, I', VIIを含有する共重合体とイミド化又は同時にアミド化せしめる方法(b)が挙げられる。この反応試薬は、ホルミル基含有化合物1モルに対し1倍モル以上、好ましくは1.5～5倍のジアミンを60～180℃、より好ましくは80～150℃でギ酸の場合は水、ホルムアミド類の場合はアンモニアまたはアミンを留去しながら2～5時間ジアミンをアミド化またはアミド交換反応させて調製する。この反応物をそのまま、次のイミド化又はアミド化試薬として使用することも可能であるが、反応混合物中には通常未反応のジアミンが含まれ、そのまま次のイミド化反応に用いると架橋、ゲル化の原因となるので、該反応混合物を減圧下に加熱して未反応ジアミンを留去して除くか、又は高沸点ジアミンの場合は、一度塩酸等で中和して再結晶によりジアミンの二塩酸塩として除去して使用することが好ましい。

【0043】この方法(a), (b)は、上記反復単位I, II及びVIIを含有する共重合体に、一般式(VIII)で表されるジアミンの塩をホルミル基含有化合物の存在下に反応させるか、又は前記の共重合体に、ジアミンとホルミル基含有化合物との反応生成物を反応させることによって進行する。ここで、イミド化反応は、スクリュ-押出機等を用いて、無溶媒熔融状態で行うこともできる。この場合、反応を均一ならしめる目的で本発明に必須のホルミル基含有化合物の他に不活性溶媒を使用することが望ましい。そのような目的で使用できる溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレン、クメン、シメン、エチルトルエン、プロピルベンゼン、ジエチルベンゼン等の芳香族炭化水素、メチルシクロペンタン、シクロヘキサン、エチルシクロペンタン、メチルシクロヘキサン、1, 1-ジメチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサン等の脂環式炭化水素、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、メチルヘプタン、3-エチルヘキサン、トリメチルペンタン等の脂肪族炭化水素、DMI, テトラメチル尿素、ジメチルスルホン、ジオキサン、1, 2-ジメトキシエタン、ヘキサメチレンリン酸トリアミド、DMSO, N-メチル-2-ピロリドン等の非プロトン性極性溶媒が挙げられる。この方法(a), (b)では、極性のかなり異なった反応基質同士を反応させることになるので、一般には非極性溶媒と極性溶媒を同時に使用することが好ましい。

【0044】上記溶媒の使用量は、特に制限はなく状況に応じて適宜選定すればよいが、通常は原料として使用する反復単位I, II及びVIIを含有する共重合体(即ち、置換又は非置換無水コハク酸を官能基として有する多官能性共重合体)に対し、重量比で0.3～2.0倍、好ましくは1倍～10倍の範囲で定めればよい。0.3倍より少ない場合は、希釈効果が十分でなく反応混合物が高粘度になり困難をきたす場合がある。一方、2.0倍よりも多くしても、使用量に相当する効果の向上は特に認められず、経済的に不利である。

【0045】上記希釈のための反応溶媒とホルミル基含有化合物の比(反応溶媒/ホルミル基含有化合物)は重量基準で40/60～100/0(なお、100/0は方法(b)の場合である。)、好ましくは50/50～95/5である。〔C〕成分の共重合体の製造において、イミド化及びアミド化反応の基質としてジアミンとホルミル基含有化合物の反応物を使用する場合は、溶媒としてのホルミル基含有化合物の使用は必ずしも必要ではないが、それ以外(即ち方法(a))では必須(ただし、溶媒としてではなく、反応基質として必須)であり、希釈のための不活性溶媒との混合溶媒の形で用いられる。比率は使用原料の官能基の比率に応じてホルミル基含有化合物の比率を増大させる方が基質の溶解性も良く、反応速度も大きい傾向にある。上述の方法(a), (b)におけるイミド化反応及びアミド化反応は、特に

触媒を必要としないが、使用する場合は、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリブチルアミン、N、N-ジメチルアニリン、N、N-ジエチルアニリン、1, 8-ジアザビシクロ(5. 4. 0)ウンデセン-7などの3級アミンが好適である。

【0046】本発明の方法では、原料の共重合体、ジアミン又はその塩、及びホルミル基含有化合物の使用比率は、使用する原料の種類や状況により異なり、一義的に定めることはできないが、通常は原料共重合体中に含まれる置換又は無置換無水コハク酸基(即ち、反復単位VI) 1モルに対し、ジアミンの未中和アミノ基又は未反応アミノ基を基準にして、1. 0~10倍、好ましく1. 05~5. 0倍である。1. 0倍未満の場合、反応完結後もイミド化又はアミド化されずに残る無水コハク酸基が存在することになり、方法(a)においては、脱酸工程で再生される第一級アミノ基と該無水コハク酸基が反応してアミド架橋によりゲル化を起こし、本発明の効果を覆すこと恐れがある。一方、モル比が10倍を超える場合は、イミド化又はアミド化の反応自体は速く進行する利点はあるが、反応試薬を多量に要する経済的不利益を免れない。

【0047】上記方法(a)、(b)における反応温度及び反応時間は、使用する溶媒及び触媒の有無によって異なるが、通常100~250℃、好ましくは110~200℃で1~20時間である。反応温度は100℃未満である場合には、反応に長時間を要するという不利益があり、又250℃を超える場合には反応物の着色と導入したホルムアミド基が熱分解を起こす恐れがある。

【0048】そこで、上記反応を無触媒で行うか、反応を比較的低い温度で行うか、又は原料共重合体に対して反応試薬のモル比を小さい仕込み比で行うときは、一般式(III)及び(IV)即ち、反復単位III及びIVの生成率が多く、式(V)即ち反復単位Vの生成は実質上無視しえるか又は非常に小さい。逆に、前記触媒を使用する条件か、あるいは高温又は原料共重合体に対する反応試薬のモル比の大きい条件下では、反復単位Vの生成比率は増加する傾向にある。ホルムアミド基とアミノ基の比率については、イミド化又はアミド化試薬としてジアミンとホルミル基含有化合物との反応物を使用したときは、実質上100%ホルムアミド基の共重合体を得られ、ジアミンの塩を用いたときはホルムアミド基とアミノ基の混在する共重合体を得られ、その比率は反応温度が高い程、また反応時間が長い程ホルムアミド基の生成率が大きくなる。

【0049】かくして、上記反応条件下においては(III)+(IV)/(V)の比率は100/0~30/70、ホルムアミド基/アミノ基の比率は100/0~30/70の共重合体を得られる。なお、本発明の〔C〕成分である共重合体の上記組成は、例えば、同位体炭素による核磁気共鳴(<sup>13</sup>C-NMR)スペクトルの

測定により得られるケミカルシフト176~180ppm付近に現れるイミド環のカルボニル炭素(W)、172~174ppm付近に現れるアミドのカルボニル炭素(Y)及び162ppm付近に現れるホルムアミド基のカルボニル炭素(Z)のピーク強度比によって知ることができる。

【0050】方法(a)においては、反応原料の仕込順序等は特に制限はなく、様々な態様で行うことができるが、通常は、ホルミル基含有化合物(あるいはこれを他の溶媒に溶かしたもの)に、前記ジアミンと酸の塩の粉末か又は溶液を加えて溶解させた後、反復単位I、II及びVIIを含有する共重合体を徐々に加えるか、あるいはその逆の順序がとられる。この間の仕込みは、溶媒(あるいはホルミル基含有化合物)の還流下の加熱下に行われてもよい。また、方法(b)においても、反応原料の仕込順序等は特に制限はなく、様々な態様で行うことができるが、通常は、反復単位I、II及びVIIを含有する共重合体を溶媒に均一に溶解した後、前記ジアミンとホルミル基含有化合物を反応させて得られる反応生成物を徐々に加えるか、あるいはその逆の順序がとられる。この間の仕込みは、溶媒の還流下の加熱下に行われてもよい。原料共重合体とジアミンの塩およびホルミル基含有化合物、あるいはジアミンとホルミル基含有化合物からの反応生成物とのイミド化又はアミド化反応は、水の生成を伴いながら進行するので、生成した水が用いた溶媒と共に共沸してくる。したがって、この共沸する水をディーン・スターク分水器などにより反応系外へ除去することにより、効率的に反応を進行させることができる。イミド化又はアミド化反応の完結は、共沸水がもはや認められなくなること、及び反応混合物を一部採取して赤外吸収スペクトルの測定により1700cm<sup>-1</sup>付近のイミドのカルボニルの吸収強度の増大がもはや認められなくなったことで確認できる。

【0051】かくして得られた反応混合物中に、ホルムアミド基及び第一級アミノ基がイミド結合又はアミド結合を介して結合された本発明の〔C〕成分である共重合体の塩が含まれる。この反応混合物をそのまま、又は必要に応じメタノール、イソプロパノール、イソブタノール、ヘキサン、水等の非溶媒に投入して粉末化した後、塩基の水溶液、又は必要に応じて塩基のメタノール/水混合溶液と接触させることにより脱酸し、遊離のアミンに変換することができる。脱酸に用いられる塩基の具体例を挙げれば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化リチウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、重炭酸ナトリウム、重炭酸カリウム、アンモニア、メチルアミン、エチルアミン、トリメチルアミン、トリエチルアミンなど水溶性塩基であればよい。そのうち、経済的な理由から、水酸化ナトリウム、炭酸ナトリウム、重炭酸ナトリウムが好ましい。なお、方法(b)によれば、共重合体の塩は生成しないので、上述したような脱



酸工程は不要である。ホルムアミド基のみを含む共重合体の精製は、反応混合物を前記メタノール、イソプロパノール、イソブタノール、ヘキサン、水等へ投入し、得られた沈澱を粉末として回収することにより容易に実施できる。

【0052】本発明の樹脂組成物は、〔A〕成分、〔B〕成分及び〔C〕成分を主成分とするものであるが、その割合については、〔A〕、〔B〕成分の合計量に対して、〔A〕成分を5～95重量%、好ましくは30～95重量%とし、〔B〕成分を95～5重量%、好ましくは70～5重量%とする。〔A〕、〔B〕成分の割合が、上記範囲外では、成形性が悪化したり、剛性などの機械的強度が低下するという不都合が生ずる。また、〔C〕成分については、〔A〕、〔B〕成分の合計量100重量部に対して、0.05～20重量部、好ましくは0.5～10重量部の範囲で選定する。この〔C〕成分の配合割合が、0.05重量部未満では、得られる組成物の面衝撃強度等の各種物性の改善効果が充分でなく、また、20重量部を超えても配合量に相当する効果の向上が認められず、経済的に不利であるとともに、物性バランスの低下が生ずる。

【0053】本発明の樹脂組成物は、上記〔A〕、〔B〕及び〔C〕成分を主成分とするものであるが、さらに必要に応じて他の添加剤（ガラス繊維、カーボンファイバー等のような強化材や無機充填材、熱安定剤、酸化防止剤、光安定剤、難燃剤、耐候剤、可塑剤、帯電防止剤、離型剤、発泡剤等）を添加することもできる。本発明の樹脂組成物を調製するに際しては、上述した各成分を、単軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、混練ロール、ブラベンダー、ニーダー等の混練機又はヘンシェルミキサー等の混合器を用い、加熱熔融状態で混練すればよい。また、この場合、混練の順序は特に制限はなく、適宜行えばよい。混練温度は用いる成分の種類、配合量、製造すべき組成物の物性等に応じて異なり、一義的には決定できないが、通常は180～340℃の範囲で選定すればよい。なお、本発明の樹脂組成物を調製するには、〔A〕、〔B〕及び〔C〕成分を適宜組み合わせる混練すればよいが、各成分間の相溶性を考慮すると、例えば〔B〕成分がオレフィン系重合体である場合には、〔C〕成分もオレフィン系ホルムアミド基含有化合物（例えばエチレン・エチルアクリレート・無水マレイン酸共重合体のホルムアミド基含有化合物など）が好ましく、また、〔B〕成分がスチレン系重合体の場合には、〔C〕成分もスチレン系ホルムアミド基含有化合物（例えばスチレン・無水マレイン酸共重合体のホルムアミド基含有化合物など）が好ましい。

【0054】

【実施例】次に、本発明を実施例により更に詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

参考例1

（エチレンジアミンのp-トルエンスルホン酸部分中和塩の調製）温度計、攪拌機、滴下ロート、還流冷却器を備えた内容量1リットルのフラスコに、メタノール300ミリリットルとp-トルエンスルホン酸・1水和物95g（0.5モル）を仕込み溶解した。氷浴で冷却しながら、エチレンジアミン150g（2.5モル）をメタノール300ミリリットルに溶解した液を、温度が10～20℃を保つような速度で滴下した。滴下終了後、70℃に加熱し、次いで減圧にして、メタノール及び未反応のエチレンジアミンを留去したところ、132.7gの白色固体が析出した。得られた白色固体を取り出し、トルエン300ミリリットルでスラリー状にして濾過し、更に100ミリリットルのトルエンで2回洗浄し、得られた白色粉末を減圧乾燥した。収量は109.8gであった。この白色粉末を、プロモフェノールブルーを指示薬として0.5規定の塩酸での滴定による中和当量の測定を実施した。中和当量の測定値と中和度を第1表に示す。

【0055】参考例2

（エチレンジアミンの塩酸部分中和塩の調製）参考例1と同じ反応容器を用い、p-トルエンスルホン酸に代えて、35%塩酸水溶液を用いる他は、参考例1と同様の手順でエチレンジアミンの一塩酸塩の白色粉末を得た。中和当量の測定値と、中和度を第1表に示す。

【0056】参考例3

（ヘキサメチレンジアミンのp-トルエンスルホン酸部分中和塩の調製）DMF500ミリリットルにp-トルエンスルホン酸・1水和物95g（0.5モル）を室温で溶解した。次いでヘキサメチレンジアミン52.2g（0.45モル）を内容物の温度が20℃を越えない速度で徐々に添加溶解してヘキサメチレンジアミンのp-トルエンスルホン酸部分中和塩のDMF溶液を調製した。固形分当たりの中和当量の測定値と、中和度の値を第1表に示す。

【0057】参考例4、5

参考例3と同様の方法により、1,3-ビス（アミノメチル）シクロヘキサジアミン、m-キシリレンジアミンのp-トルエンスルホン酸塩を調製した。得られた中和当量の測定値と、中和度の値を第1表に示す。

【0058】参考例6

（エチレンジアミンとホルムアミドの反応物の調製）参考例1と同じ反応容器に、エチレンジアミン300g（5.0モル）を仕込み、次いでホルムアミド45g（1.0モル）を室温で徐々に滴下した。滴下終了後加熱し80～120℃で5時間反応させた。この間アンモニアガスの発生が認められた。反応終了後61℃/88mmHgで未反応のエチレンジアミンを留去して残渣物を得た。この残渣物の中和滴定により測定した中和当量を第1表に示す。

【0059】参考例7



(ヘキサメチレンジアミンとDMFの反応物の調製) 参考例6と同様にして、ヘキサメチレンジアミンとDMFを反応させた。反応混合物をエタノール/水(容量比7/3)に溶解し35%塩酸で中和後、濃縮し再結晶した。ヘキサメチレンジアミンの塩酸塩が針状結晶として析出するので濾別除去し、濾液を濃縮した。濃縮残渣の電位差滴定による中和当量を第1表に示す。

【0060】参考例8

参考例7と同様にして1, 3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサジアミンとDMFを反応させてその反応物を得た。濃縮残渣の電位差滴定による中和当量を第1表

第1表

	塩の固形分 濃度(%)	中和当量 (eq/g)	中和度 (%)
参考例1	100	$4.21 \times 10^{-3}$	50.7
参考例2	100	$10.15 \times 10^{-3}$	50.7
参考例3	20.5	$2.81 \times 10^{-3}$	56.4
参考例4	20.0	$2.90 \times 10^{-3}$	53.0
参考例5	25.0	$2.35 \times 10^{-3}$	59.1
参考例6	—	$10.79 \times 10^{-3}$	—
参考例7	—	$6.25 \times 10^{-3}$	—
参考例8	—	$5.11 \times 10^{-3}$	—
参考例9	—	$5.50 \times 10^{-3}$	—

【0063】参考例10

マレイン酸グラフトポリプロピレン(マレイン酸変性体:マ変-1)の調製  
特公昭56-9925号公報記載の方法を参考にして製造した。重量平均分子量(Mw)60000、数平均分子量(Mn)24000の結晶性ポリプロピレンの粉末(未変性体:未変-1)100重量部、無水マレイン酸12重量部およびジクミルパーオキシド4重量部を予め混合し、スクリー径30mm、L/D=28の押出機をバレル温度230℃に設定し、スクリー回転数60rpmで押出反応を行い、吐出されたグラフト化物を粉碎後、アセトンに浸漬して未反応無水マレイン酸を抽出

に示す。

【0061】参考例9

m-キシリレンジアミン272g(20モル)とギ酸23g(0.5モル)をディーン・スターク分水器で水を留去させながら120℃、10時間反応させた。反応物を参考例7と同様の方法により処理し、m-キシリレンジアミンとギ酸の反応物を得た。電位差滴定による中和当量を第1表に示す。

【0062】

【表1】

除去、乾燥して、無水マレイン酸グラフト化ポリプロピレン樹脂(マ変-1)を得た。このものの無水マレイン酸グラフト量は4.5重量%、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)による分子量は、ポリスチレン換算でMw=15000、Mn=6500であった。

【0064】参考例11

参考例10と同様の方法により第2表に示す無水マレイン酸グラフト共重合体(マ変-2)~(マ変-10)を得た。

【0065】

【表2】

第 2 表

	原料共重合体	無水マレイン酸 グラフト量 (重量%)
マ変-2	スチレン-ブタジエン共重合体水素添加物 (重量比 3/7, $M_w=50000$ , $M_n=48000$ )	1.0
マ変-3	エチレン-プロピレン共重合体 (重量比 1/1, $M_w=11800$ , $M_n=6600$ )	7.8
マ変-4	エチレン-プロピレン共重合体 (重量比 7/3, $M_w=90000$ , $M_n=41000$ )	0.5
マ変-5	ポリブタジエン ( $M_w=30000$ , $M_n=14000$ )	3.7
マ変-6	ポリエチレン ( $M_w=5000$ , $M_n=2200$ )	2.0
マ変-7	スチレン-イソブレン共重合体水素添加物 (重量比 3/7, $M_w=41000$ , $M_n=18200$ )	3.1
マ変-8	クロロブレンゴム ( $M_w=30000$ , $M_n=13000$ )	2.7
マ変-9	ニトリルゴム ( $M_w=34000$ , $M_n=15000$ )	1.8
マ変-10	エチレン-アクリル酸エチル共重合体 (重量比 17/3, $M_w=70000$ , $M_n=32000$ )	4.5

## 【0066】参考例 12

ホルムアミド基含有共重合体(ホ含-1)の調製  
 温度計、攪拌機、滴下ロート、ディーン・スターク分水器を備えた内容積 1 リットルのフラスコに、キシレン 600 ミリリットル及び参考例 10 で製造した無水マレイン酸グラフトポリプロピレン(マ変-1) 120 g を仕込んで加熱し、140℃でキシレンの還流下に溶解した。次に、このフラスコに、参考例 1 で調製したエチレンジアミンの p-トルエンスルホン酸塩 17.8 g を DMF 200 ミリリットルに溶解したものを 3 時間かけて徐々に滴下した。この間、反応混合物はキシレンの還流温度下に保持され、イミド化反応の結果、共沸してくる水はディーン・スターク分水器で反応系外へ除去した。上記エチレンジアミンの塩の滴下開始より 14 時間反応を継続した後、冷却し、反応混合物を 5 リットルのメタノール中に投入し、生成物を沈澱として回収した。この沈澱をトルエン加熱下で溶解し、トルエンキャストフィルムを作製して赤外吸収(IR)スペクトルを測定したところ、1768, 1700  $\text{cm}^{-1}$  のイミド環に基づく吸収、1660  $\text{cm}^{-1}$  (ショルダー)、1530  $\text{cm}^{-1}$  にホルムアミド基の吸収の他に、1122, 1035, 1010, 685, 570  $\text{cm}^{-1}$  に p-トルエンスルホン酸に基づく吸収が観測され、ホルムアミド基又は第一級アミノ基が p-トルエンスルホン酸の形で、イミド結合を介してポリプロピレンに結合していることが確認された。この沈澱を、更に炭酸カリウム 8.0 g を含む水/メ

タノール(容量比 1/1)溶液に一夜浸漬後、濾別し、水及びメタノールで十分洗浄後、乾燥した。収量は 121.1 g であった。得られた共重合体は淡黄白色の粉末で、100℃でテトラリンに 10 重量%で溶解し、同温度で B 型粘度計にて粘度を測定したところ、180 cps であった。また、キシレンキャストフィルムでの IR スペクトルでは、1122, 1035, 1010, 685, 570  $\text{cm}^{-1}$  の p-トルエンスルホン酸に基づく吸収は完全に消失しており、3400  $\text{cm}^{-1}$  にアミノ基に基づく吸収、1768  $\text{cm}^{-1}$ , 1700 にイミド環に基づく吸収、1660 (ショルダー), 1530  $\text{cm}^{-1}$  にホルムアミド基に基づく吸収が観測された。CDC13 中で測定した NMR スペクトルでは、176~180 ppm にはイミド環のカルボニル炭素が強度比 2.00 で、162 ppm にはホルムアミド基のカルボニル炭素が強度比 0.78 で観測された。172~174 ppm にはアミノ基の存在を示すスペクトルは観測されなかった。NMR スペクトルの強度化より ((II)+(IV))/(V)=100/0 NHCHO 基/NH<sub>2</sub> 基=78/22 と決定された。

## 【0067】参考例 13

ホルムアミド基含有共重合体(ホ含-2)の調製  
 参考例 12 と同じ反応容器に、参考例 3 で調製したヘキサメチレンジアミンの p-トルエンスルホン酸塩 10.8 g を含む DMF 溶液 50 g 及び DMF 150 ミリリットルを仕込み、80℃に加熱した。上記反応容器に、参考

例 11 で製造したスチレン-ブタジエン共重合体の水素添加物の無水マレイン酸変性物 (マ変-2) ( $M_w=50000$ ,  $M_n=48000$ , 無水マレイン酸グラフト量 1%) 60 g をキシレン 600 ミリリットルに溶解して、滴下ロートより徐々に滴下した。滴下終了後、反応混合物を一部採取して赤外吸収スペクトルを調べたところ、 $1780\text{ cm}^{-1}$  の無水コハク酸環に基づく吸収は完全に消失していた。加熱、昇温を続け、 $140^\circ\text{C}$  付近よりキシレンの還流と共に水が共沸してくるので、これをディーン・スターク分水器により連続的に反応系外へ除去した。 $140^\circ\text{C}$  で 8 時間反応を続け、もはや新たな水の生成が認められなくなった時点で反応を終了し、反応混合物を減圧下で 400 ミリリットルまで濃縮し、更に炭酸ソーダ 6.0 g を含む水/メタノール (容量比 1/1) 溶液 5 リットル中へ投入し、沈澱を得た。得られた沈澱を水及びメタノールで十分洗浄後、乾燥した。収量は 59.1 g で淡黄白色であった。得られた共重合体をキシレンに 10 重量% で溶解し、 $25^\circ\text{C}$  で B 型粘度を測定したところ、 $790\text{ cps}$  であった。また、キシレンキャストフィルムでの赤外吸収スペクトルでは  $3420\text{ cm}^{-1}$  にアミノ基の吸収 (痕跡)、 $1775$ ,  $1702\text{ cm}^{-1}$  にイミド環の吸収、 $1665$  (ショルダー)、 $1529\text{ cm}^{-1}$  にホルムアミド基の吸収が観測され、CDCI<sub>3</sub> 中で測定した NMR スペクトルでは、 $176\sim 180\text{ ppm}$  にイミド環のカルボニル炭素が強度比 2.00 で、 $162\text{ ppm}$  にはホルムアミド基のカルボニル炭素が強度比 0.65 で観測された。これより (III) + (IV) / (V) =  $100/0$ ,  $\text{NHCHO 基}/\text{NH}_2\text{ 基}$  =  $65/35$  と決定された。

#### 【0068】参考例 14

ホルムアミド基含有共重合体 (ホ含-3) の調製  
参考例 12 と同じ反応容器に、参考例 11 で調製した無水マレイン酸グラフトエチレン-プロピレン共重合体 (マ変-3) 90 g, クメン 500 ミリリットルを仕込み溶解した。 $153^\circ\text{C}$  に加熱し、クメンの還流下で参考例 2 で調製したエチレンジアミンの塩酸塩 17.7 g を DMF 80 ミリリットルに溶解して滴下した。共沸してくる水をディーン・スターク分水器で除去しながら 9 時間反応させた。反応終了後、反応混合物をメタノール 5 リットル中へ投入し生成物を沈澱として回収した。この沈澱を炭酸ソーダ 10 g を含むメタノール/水 (容量比 1/1) に一夜浸漬後、濾過、水とメタノールで十分洗浄後、乾燥し白色の共重合体粉末を得た。収量は 89.7 g であった。得られた共重合体をキシレンに 10 重量% で

溶解して  $25^\circ\text{C}$  で測定した B 型粘度は  $350\text{ cps}$  であった。また、キシレンキャストフィルムでの IR スペクトルでは  $3435\text{ cm}^{-1}$  にアミノ基の吸収、 $1775$ ,  $1700\text{ cm}^{-1}$  にイミド環、 $1670$  (ショルダー)、 $1529\text{ cm}^{-1}$  にホルムアミド基及びアミド基の吸収が観測された。CDCI<sub>3</sub> 中で測定した NMR スペクトルでは、 $176\sim 180\text{ ppm}$  にイミド環のカルボニル炭素が強度比 2.00 で、 $162\text{ ppm}$  にはホルムアミド基のカルボニル炭素が強度比 1.09 で、 $172\sim 174\text{ ppm}$  にはアミド基のカルボニル炭素が強度比 0.22 で観測され (III) + (IV) / (V) =  $82/18$ ,  $\text{NHCHO 基}/\text{NH}_2\text{ 基}$  =  $89/11$  と決定された。

#### 【0069】参考例 15

ホルムアミド基含有共重合体 (ホ含-4) の調製  
参考例 12 において、無水マレイン酸グラフトポリプロピレンに代えて、参考例 11 の無水マレイン酸グラフトポリエチレン (マ変-6) 120 g を使用し、エチレンジアミンの p-トルエンスルホン酸塩に代えて参考例 6 のエチレンジアミンとホルムアミドの反応物 45.5 g を用いる他は参考例 12 と同様に反応を行った。反応混合物をメタノール 5 リットル中へ投入し、沈澱を十分な量のメタノールで洗浄、乾燥して白色の目的共重合体が収量 134.3 g で得られた。この共重合体をテトラリン/DMAI = 1/1 (容量比) に 10 重量% で溶解し、 $100^\circ\text{C}$  で測定した B 型粘度は  $45\text{ cps}$  であった。IR スペクトル (KBr 錠剤法) では、 $1780$ ,  $1772\text{ cm}^{-1}$  にイミド環の吸収、 $1670$  (ショルダー)、 $1532\text{ cm}^{-1}$  にはホルムアミド基の吸収が観測された。CDCI<sub>3</sub> 中で測定した NMR スペクトルでは、 $176\sim 180\text{ ppm}$  にイミド環のカルボニル炭素が強度比 2.00 で、 $162\text{ ppm}$  にはホルムアミドのカルボニル炭素が強度比 0.85 で観測された。これより (III) + (IV) / (V) =  $100/0$ ,  $\text{NHCHO 基}/\text{NH}_2\text{ 基}$  =  $85/15$  と決定された。

#### 【0070】参考例 16~21

ホルムアミド基含有共重合体 (ホ含-5~10) の調製  
ジアミンの塩 (又はジアミンとホルミル基含有化合物との反応物) として参考例 1~9 の塩を用い、原料の共重合体として参考例 11 に記載の無水マレイン酸変性物を用いた以外は、参考例 12~15 と同様にして行った。結果を第 3 表に示す。得られた共重合体の粘度を参考例 1 と同様に測定した。その結果を第 3 表に示す。

#### 【0071】

【表 3】

第 3 表

	原料共重合	
	種 類	量 (g)
ホ含-5	無水マレイン酸グラフト エチレン-プロピレン 共重合体	120
ホ含-6	無水マレイン酸グラフト ポリブタジエン	100
ホ含-7	無水マレイン酸グラフト スチレン-イソプレン 共重合体	100
ホ含-8	無水マレイン酸グラフト クロロプレンゴム	100
ホ含-9	無水マレイン酸グラフト ニトリルゴム	100
ホ含-10	無水マレイン酸グラフト エチレン-アクリル酸エチル 共重合体	100

【0072】

【表4】

第 3 表 (続き)

	ジアミンの塩又はジアミンとホルミル基 含有化合物との反応生成物	
	種 類	量 (g)
ホ含-5	ヘキサメチレンジアミン と DMF の反応物 (参考例 7)	4.0
ホ含-6	1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサンジアミン p-トルエンスルホン酸塩 (参考例 4)	19.5
ホ含-7	m-キシリレンジアミン p-トルエンスルホン酸塩 (参考例 5)	20.0
ホ含-8	1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサンジアミン と DMF の反応物 (参考例 8)	10.8
ホ含-9	m-キシリレンジアミン とギ酸の反応物*1 (参考例 9)	10.0
ホ含-10	エチレンジアミンとホルミルアミドの反応物 (参考例 6)	10.6

\* 1 : 触媒としてトリエチルアミンを2.0 g 使用した。

【0073】

【表5】

第3表 (続き)

	反応溶媒			
	溶媒 I		溶媒 II	
	種類	量 (ml)	種類	量 (ml)
ホ含-5	—	—	キシレン	600
ホ含-6	DMF	100	キシレン	500
ホ含-7	DMF	100	キシレン	500
ホ含-8	メチルホルムアミド	50	キシレン	400
ホ含-9	—	—	キシレン	500
ホ含-10	DMF	100	クメン	400

【0074】

【表6】

第3表 (続き)

	反応条件		収量 (g)
	温度 (℃)	時間 (hr.)	
ホ含-5	140	4	117.6
ホ含-6	140	9	101.5
ホ含-7	140	3	101.1
ホ含-8	140	8	101.5
ホ含-9	140	6	100.3
ホ含-10	153	14	100.9

【0075】

【表7】

第 3 表 ( 続 き )

	共重合体の粘度				共重合体の色調
	使用溶媒	測定濃度 (wt%)	測定温度 (℃)	粘度 (cps)	
ホ含-5	キシレン	10	25	1350	白色
ホ含-6	トルエン	10	25	410	淡黄色
ホ含-7	キシレン	10	25	625	白色
ホ含-8	キシレン	10	25	390	淡黄色
ホ含-9	キシレン	10	25	450	淡黄色
ホ含-10	キシレン	10	25	510	白色

【0076】

【表8】

第3表(続き)

	赤外吸収スペクトル ( $\text{cm}^{-1}$ )	$^{13}\text{C}$ -NMRスペクトル (強度比)		
		W*	Y*	Z*
ホ合-5	1772 イミド環 1702 イミド環 1672 ショルダール 1529 ホルムアミド基	2.00	-	1.00
ホ合-6	3432 アミノ基 1778 イミド環 1702 イミド環 1667 ショルダール 1531 ホルムアミド基	2.00	-	0.81
ホ合-7	3450 アミノ基 1769 イミド環 1695 イミド環 1658 ショルダール 1530 ホルムアミド基	2.00	-	0.65
ホ合-8	1775 イミド環 1700 イミド環 1665 ショルダール 1531 ホルムアミド基	2.00	-	1.00
ホ合-9	1770 イミド環 1700 イミド環 1668 ショルダール 1532 ホルムアミド基、 アミド基	2.00	2.57	3.57
ホ合-10	1772 イミド環 1698 イミド環 1662 ショルダール 1530 ホルムアミド基、 アミド基	2.00	0.41	1.41

\* 1 176 ~ 180ppm, \* 2 172 ~ 174ppm, \* 3 162ppm

【0077】

【表9】

第3表(続き)

	官能基比率	
	( (Ⅲ) + (Ⅳ) ) / (Ⅴ)	NHCHO / NH <sub>2</sub>
ホ合-5	100 / 0	100 / 0
ホ合-6	100 / 0	81 / 19
ホ合-7	100 / 0	35 / 65
ホ合-8	100 / 0	100 / 0
ホ合-9	28 / 72	100 / 0
ホ合-10	71 / 29	100 / 0

【0078】参考例17

DNFに代えてDMIを200ミリリットルを用いた他

は参考例12と同じ原料を用いて同様に実施した。キシレンに可溶でテトラリンに10重量%で溶解し100°C B型粘度計で測定した粘度が165cps, IRスペクトル(キシレンキャストフィルム)では $3350\text{cm}^{-1}$ (アミノ基),  $1770\text{cm}^{-1}$ ,  $1700\text{cm}^{-1}$ (イミド環)を示す共重合体が得られたが、本品は茶褐色の粉末であった(アミノ基含有変性体:ア変-1)。

【0079】実施例1~29及び比較例1~30  
下記第4, 5表に示す所定の〔A〕及び〔B〕成分、ならびに上記アミノ変性体、変性体あるいは未変性体からなる〔C〕成分を、ドライブレンド後、十分に乾燥し、NVC単軸押出機(ナカタニ機械製)を用いて、ペントを効かせながら十分に混練を行った。次に、IS100EN射出成形機(東芝機械製)を用いてテスト用ピースを成形した。得られたテスト用ピースを使用して、下記の方法で各種の物性評価を行った。得られた結果を第6表に示す。

【0080】(1)アイゾット衝撃試験: JIS-K-7110に準拠。

【条件】 温度=23°C及び-30°C, ノッチ付, n=5

(2)面衝撃試験: 自動落錘衝撃試験を行い、破壊形態及び破壊エネルギーを測定した。

【方法】 80×80×3mmの射出成形板の中央部を

試料固定板(穴径2インチ)の穴中央部に固定し、以下に示す条件下で、力に対する変位曲線を求め、力が急減する変位点迄の面積を求め破壊エネルギー〔J〕とした。また、試験終了後破壊形態を観察し、延性(D)→やや延性(D')→やや脆性(B')→脆性(B)なる評価を実施した。

【条件】 温度=-10°C, 錘の荷重=3.75kg, 錘の速度=7.0m/秒, n=5。なお、使用試験機はRDT5000(レオメトリックス社製)であった。

(3)剥離性評価: 基盤目剥離試験に従った。

【方法】 まず、80×80×3mmの射出成形板(射出時間及び充填時間一定)の中央部の10×10mmのマス内に、1mm角の基盤目100個を鋭いカッター刃を用いて切り込みを入れた。次に、セロハン粘着テープをその基盤目に強く押しつけるようにして貼り、45°Cの角度を保って急激に剥がして基盤目の残存率を以下の形で定義し、評価をした。試験は各サンプル5回行い、平均し、平均残存率で評価を行った。

(残存率)=(残存する1mm角の基盤目数)/100

(4)外観: フロアマークや筋状の模様, ケバ立ち, シルバーといった外観不良を目視評価し, ○(良好), △(やや不良), ×(不良)なる評価を行った。

【0081】

【表10】

第4表(〔A〕成分としての樹脂)

略号	樹脂名	グレード
PC-1	ポリカーボネート	A2200 <sup>*1</sup>
PC-2	ポリカーボネート	A2500 <sup>*2</sup>
PC-3	ポリアリレート	U100T <sup>*4</sup>
PET-1	ポリエチレンテフタレート	PA200 <sup>*3</sup>
PBT-1	ポリブチレンテフタレート	N1000 <sup>*6</sup>
PA-1	ポリアミド-6	1013 <sup>*7</sup>
PA-2 <sup>*1</sup>	ポリアミド-6	1012C <sup>*8</sup>
PA-3	ポリアミド-6, 6	CM3007 <sup>*9</sup>
POM-1	ポリオキシメチレン	M25 <sup>*10</sup>
PPE-1	ポリフェニレンエーテル	SE100J <sup>*11</sup>

【0082】\*1 末端がカルボン酸リッチであり、末端のカルボン酸とアミノ基の比が9:1である。

\*2 出光石油化学(株)製, 商品名: タフロン

\*3 出光石油化学(株)製, 商品名: タフロン

\*4 ユニチカ(株)製, 商品名: Uポリマー

\*5 三菱レーヨン(株)製, 商品名: ダイヤナイト

\*6 三菱レーヨン(株)製, 商品名: タフベツト

\*7 宇部興産(株)製, 商品名: 宇部ナイロン

\*8 宇部興産(株)製, 商品名: 宇部ナイロン

\*9 東レ(株)製, 商品名: アラミン

\*10 ポリプラ(株)製, 商品名: ジュラコン

\*11 日本GEプラスチック(株)製, 商品名: ノリル

【0083】



【表11】

第5表 ( ( B ) 成分としての樹脂 )

略号	樹脂名	グレード
PP-1	ポリプロピレン	J-465H <sup>*12</sup>
PP-2	ポリプロピレン	J-609H <sup>*13</sup>
PP-3	ポリプロピレン	E100G <sup>*14</sup>
PE-1	ポリエチレン	750LB <sup>*15</sup>
EP-1	エチレン-プロピレンゴム	EP812P <sup>*16</sup>
PS-1	汎用ポリスチレン	US300 <sup>*17</sup>
PS-2	高衝撃性ポリスチレン	HT52 <sup>*18</sup>
ABS-1	ABS樹脂	DP611 <sup>*19</sup>
AS-1	AS樹脂	290SF <sup>*20</sup>
SMA-1	スチレン-マレイン酸共重合体	UG830 <sup>*21</sup>

【0084】\*12 出光石油化学(株)製、ブロックポリプロピレン、商品名：出光ポリプロ

\*13 宇部興産(株)製、ブロックポリプロピレン、商品名：宇部ポリプロ

\*14 出光石油化学(株)製、ホモポリプロピレン、商品名：出光ポリプロ

\*15 出光石油化学(株)製、商品名：出光ポリエチレン

\*16 JSR製、商品名：JSR EP

\*17 出光石油化学(株)製、GPPS、商品名：出光スチロール

\*18 出光石油化学(株)製、HIPS、商品名：出光スチロール

\*19 JSR製、商品名：JSR ABS

\*20 JSR製、商品名：JSR AS

\*21 出光石油化学(株)製、商品名：モアマックス

【0085】

【表12】

第 6 表

	樹脂組成		
	成分[A] (重量%)**	成分[B] (重量%)**	成分[C] (重量部)**
実施例 1	PC-1 (90)	PP-1 (10)	ホ含 - 2 (2)
実施例 2	PC-1 (70)	PP-1 (30)	ホ含 - 1 (5)
実施例 3	PC-1 (30)	PP-1 (70)	ホ含 - 3 (5)
実施例 4	PC-1 (10)	PP-1 (90)	ホ含 - 10(10)
実施例 5	PC-2 (5)	PP-2 (95)	ホ含 - 7 (5)
比較例 1	PC-1 (90)	PP-1 (10)	未変 - 2 (2)
比較例 2	PC-1 (70)	PP-1 (30)	-
比較例 3	PC-1 (70)	PP-1 (30)	ア変 - 1 (5)
比較例 4	PC-1 (30)	PP-1 (70)	BP-1 (5)
比較例 5	PC-1 (10)	PP-1 (90)	未変 - 10(10)
実施例 6	PC-1 (70)	PE-1 (30)	ホ含 - 4 (5)
実施例 7	PC-1 (30)	PE-1 (70)	ホ含 - 6 (2)
実施例 8	PC-1 (95)	EP-1 (5)	ホ含 - 5 (5)
比較例 6	PC-2 (5)	PP-2 (95)	未変 - 7 (5)
比較例 7	PC-1 (70)	PE-1 (30)	-
比較例 8	PC-1 (30)	PE-1 (70)	未変 - 6 (2)
比較例 9	PC-1 (95)	EP-1 (5)	未変 - 5 (5)

【0086】

【表13】

第 6 表 ( 続 き )

	物 性		
	衝 撃 強 度 *c		色 調 *d
	23℃	- 30℃	
実 施 例 1	76.5	42.5	白 色
実 施 例 2	62.8	40.1	白 色
実 施 例 3	42.3	27.6	白 色
実 施 例 4	41.9	23.3	白 色
実 施 例 5	15.9	9.8	淡 黄 色
比 較 例 1	34.0	5.3	白 色
比 較 例 2	5.3	3.1	白 色
比 較 例 3	60.4	40.2	淡 褐 色
比 較 例 4	36.5	12.3	白 色
比 較 例 5	22.4	7.3	白 色
実 施 例 6	50.5	24.8	白 色
実 施 例 7	32.3	20.4	白 色
実 施 例 8	72.6	40.3	白 色
比 較 例 6	72.6	40.3	淡 黄 色
比 較 例 7	4.7	1.5	白 色
比 較 例 8	12.7	7.6	白 色
比 較 例 9	50.2	14.5	白 色

【 0 0 8 7 】

【 表 1 4 】

第6表(続き)

	樹脂組成		
	成分[A] (重量%)**	成分[B] (重量%)**	成分[C] (重量部)**
実施例9**	PC-3 (70)	ABS-1 (30)	ホ含-7(5)
実施例10	PC-1 (70)	ABS-1 (30)	ホ含-2(5)
実施例11	PC-1 (90)	PS-1 (10)	ホ含-2(5)
実施例12	PC-1 (30)	AS-1 (70)	ホ含-9(10)
比較例10**	PC-3 (70)	ABS-1 (30)	マ変-7(5)
比較例11	PC-1 (70)	ABS-1 (30)	-
比較例12	PC-1 (90)	PS-1 (10)	-
比較例13	PC-1 (30)	AS-1 (70)	マ変-9(10)
実施例13	PC-2 (70)	SMA-1 (30)	ホ含-2(2)
実施例14	PBT-1 (50)	PE-1 (50)	ホ含-7(5)
実施例15	PBT-1 (30)	PP-1 (70)	ホ含-1(2)
実施例16	PBT-1 (90)	BP-1 (10)	ホ含-5(2)
実施例17	PBT-1 (30)	SMA-1 (70)	ホ含-10(5)
比較例14	PC-2 (70)	SMA-1 (30)	マ変-2(2)
比較例15	PBT-1 (50)	PE-1 (50)	マ変-7(5)
比較例16	PBT-1 (30)	PP-3 (70)	ア変-1(2)
比較例17	PBT-1 (90)	BP-1 (10)	-
比較例18	PBT-1 (30)	SMA-1 (70)	未変-10(5)
実施例18	PBT-1 (50)	ABS-1 (50)	ホ含-2(5)
実施例19	PA-1 (30)	PP-1 (70)	ホ含-1(5)
実施例20	PA-1 (70)	PE-1 (30)	ホ含-4(5)
実施例21	PA-2 (70)	PE-1 (30)	ホ含-4(5)

【0088】

【表15】

第6表(続き)

【0089】

【表16】

	物性		
	衝撃強度**		色調**
	23℃	-30℃	
実施例9**	36.8	19.7	淡黄色
実施例10	69.6	40.0	淡黄色
実施例11	34.3	20.8	白色
実施例12	23.8	12.4	淡黄色
比較例10**	20.6	8.9	淡黄色
比較例11	62.4	37.3	淡黄色
比較例12	24.2	14.3	白色
比較例13	13.1	3.2	淡黄色
実施例13	37.9	24.3	白色
実施例14	39.7	25.4	白色
実施例15	33.7	14.8	白色
実施例16	40.3	23.0	白色
実施例17	23.6	13.5	白色
比較例14	15.4	5.3	白色
比較例15	13.2	6.3	白色
比較例16	36.7	15.0	淡褐色
比較例17	20.9	7.4	白色
比較例18	10.3	2.3	白色
実施例18	60.4	23.6	淡黄色
実施例19	32.7	19.9	白色
実施例20	64.2	30.9	白色
実施例21	70.8	34.6	白色

第 6 表 ( 続 き )

	樹脂組成		
	成分[A] (重量%)**	成分[B] (重量%)**	成分[C] (重量部)*b
比較例 19	PBT-1 (50)	ABS-1 (50)	マ変 - 2 (5)
比較例 20	PA-1 (30)	PP-2 (70)	ホ含 - 1 (25)
比較例 21	PA-1 (30)	PP-2 (70)	PP-2 (25)
実施例 22	PA-3 (90)	BP-1 (10)	ホ含 - 5 (2)
実施例 23	PA-1 (30)	ABS-1 (70)	ホ含 - 7 (2)
実施例 24	PA-3 (90)	PS-2 (10)	ホ含 - 7 (10)
比較例 22	PA-1 (70)	BP-1 (30)	-
比較例 23	PA-3 (90)	BP-1 (10)	-
比較例 24	PA-1 (30)	ABS-1 (70)	未変 - 4 (2)
実施例 25	PA-1 (70)	SMA-1 (30)	ホ含 - 2 (5)
実施例 26	POM-1 (95)	BP-1 (5)	ホ含 - 3 (5)
実施例 27	PPE-1 (30)	PE-1 (70)	ホ含 - 3 (5)
実施例 28	PPE-1 (70)	ABS-1 (30)	ホ含 - 2 (5)
実施例 29	PPE-1 (70)	SMA-1 (30)	ホ含 - 7 (5)
比較例 25	PA-3 (90)	PS-2 (10)	マ変 - 7 (10)
比較例 26	PA-1 (70)	SMA-1 (30)	未変 - 2 (5)
比較例 27	POM-1 (95)	BP-1 (5)	マ変 - 3 (5)
比較例 28	PPE-1 (30)	PE-1 (70)	-
比較例 29	PPE-1 (70)	ABS-1 (30)	マ変 - 2 (5)
比較例 30	PPE-1 (70)	SMA-1 (30)	未変 - 7 (5)

【0090】

【表 17】

第 6 表 ( 続 き )

	物 性		
	衝 撃 強 度 *c		色 調 *d
	23℃	- 30℃	
比較例 19	52.4	13.1	淡黄色
比較例 20	23.5	10.4	白色
比較例 21	8.9	2.1	白色
実施例 22	54.9	31.2	白色
実施例 23	62.5	43.1	淡黄色
実施例 24	35.6	17.7	白色
比較例 22	5.8	2.6	白色
比較例 23	26.4	7.3	白色
比較例 24	30.4	17.5	淡黄色
実施例 25	33.8	20.2	白色
実施例 26	25.6	14.2	白色
実施例 27	23.8	14.5	淡黄色
実施例 28	40.5	26.3	淡黄色
実施例 29	23.9	13.6	淡黄色
比較例 25	23.2	12.3	白色
比較例 26	20.1	8.8	白色
比較例 27	13.6	6.3	白色
比較例 28	8.9	2.0	淡黄色
比較例 29	26.3	10.1	淡黄色
比較例 30	17.3	8.0	淡黄色

【0091】

【表18】

第 6 表 ( 続 き )

	物 性			
	面 衝 撃 強 度		剝離性**	外 観**
	破面形態	破壊エネルギー(J)		
実施例 1	D	3 3	100/100	○
実施例 2	D	2 8	100/100	○
実施例 3	D'	2 2	100/100	○
実施例 4	D'	2 0	80/100	○
実施例 5	B'	8	74/100	○
比較例 1	B	4	63/100	△
比較例 2	B	1	10/100	×
比較例 3	D	3 0	100/100	○
比較例 4	B'	5	6/100	×
比較例 5	B	2	2/100	×
実施例 6	D	2 5	100/100	○
実施例 7	D	2 2	100/100	○
実施例 8	D	3 4	100/100	○
比較例 6	B	3	4/100	○
比較例 7	B	1	7/100	×
比較例 8	B'	4	12/100	×
比較例 9	D'	1 3	100/100	○

【 0 0 9 2 】

【 表 1 9 】



第6表(続き)

	混練条件		
	混練機	温度 (℃)	回転数 (rpm)
実施例 1	NVC	260	60
実施例 2	NVC	260	60
実施例 3	NVC	260	60
実施例 4	NVC	260	60
実施例 5	NVC	260	60
比較例 1	NVC	260	60
比較例 2	NVC	260	60
比較例 3	NVC	260	60
比較例 4	NVC	260	60
比較例 5	NVC	260	60
実施例 6	NVC	260	60
実施例 7	NVC	260	60
実施例 8	NVC	260	60
比較例 6	NVC	260	60
比較例 7	NVC	260	60
比較例 8	NVC	260	60
比較例 9	NVC	260	60

【0093】

【表20】

第6表(続き)

	物 性			
	面衝撃強度		剝離性**	外観**
	破面形態	破壊エネルギー(J)		
実施例9**	D'	20	100/100	○
実施例10	D	25	100/100	○
実施例11	D'	23	100/100	○
実施例12	B'	10	100/100	○
比較例10**	B	3	76/100	△
比較例11	D'	19	75/100	○
比較例12	B'	4	100/100	△
比較例13	B	3	100/100	△
実施例13	D	25	100/100	○
実施例14	D'	20	100/100	○
実施例15	D'	15	100/100	○
実施例16	D	23	100/100	○
実施例17	B'	6	100/100	○
比較例14	B	2	100/100	△
比較例15	B'	4	35/100	△
比較例16	D'	16	100/100	○
比較例17	B'	7	100/100	△
比較例18	B	2	19/100	×
実施例18	D	26	100/100	○
実施例19	D'	19	100/100	○
実施例20	D	28	100/100	○
実施例21	D	27	100/100	○

【0094】

【表21】

第 6 表 ( 続 き )

	混練条件		
	混練機	温度 (℃)	回転数 (rpm)
実施例 9 **	NVC' **	260	60
実施例 10	NVC'	260	60
実施例 11	NVC'	260	60
実施例 12	NVC'	260	60
比較例 10 **	NVC' **	260	60
比較例 11	NVC'	260	60
比較例 12	NVC'	260	60
比較例 13	NVC'	260	60
実施例 13	NVC	260	60
実施例 14	NVC	260	60
実施例 15	NVC	260	60
実施例 16	NVC	260	60
実施例 17	NVC	260	60
比較例 14	NVC	260	60
比較例 15	NVC	260	60
比較例 16	NVC	260	60
比較例 17	NVC	260	60
比較例 18	NVC	260	60
実施例 18	NVC	260	60
実施例 19	NVC	260	60
実施例 20	NVC	260	60
実施例 21	NVC	260	60

【0095】

【表 22】

第6表(続き)

	物 性			
	面衝撃強度		剝離性**	外觀**
	破面形態	破壊エネルギー(J)		
比較例19	D'	13	100/100	○
比較例20	B	3	100/100	×
比較例21	B	1	1/100	×
実施例22	D	28	100/100	○
実施例23	D	32	100/100	○
実施例24	D'	14	100/100	○
実施例25	D'	14	100/100	○
実施例26	B'	11	100/100	○
実施例27	B'	12	100/100	○
実施例28	D	24	100/100	○
実施例29	B'	13	100/100	○
比較例22	B	1	13/100	×
比較例23	B'	6	100/100	△
比較例24	D'	13	100/100	△
比較例25	B'	6	100/100	△
比較例26	B'	4	100/100	×
比較例27	B	2	100/100	○
比較例28	B	1	35/100	×
比較例29	B'	7	70/100	○
比較例30	B	4	100/100	×

【0096】

【表23】

第 6 表 ( 続 き )

	混練条件		
	混練機	温度 (℃)	回転数 (rpm)
比較例 19	NVC	260	60
比較例 20	NVC	260	60
比較例 21	NVC	260	60
実施例 22	NVC	260	60
実施例 23	NVC	260	60
実施例 24	NVC	260	60
実施例 25	NVC	260	60
実施例 26	NVC	260	60
実施例 27	NVC	260	60
実施例 28	NVC	260	60
実施例 29	NVC	260	60
比較例 22	NVC	260	60
比較例 23	NVC	260	60
比較例 24	NVC	260	60
比較例 25	NVC	260	60
比較例 26	NVC	260	60
比較例 27	NVC	260	60
比較例 28	NVC	260	60
比較例 29	NVC	260	60
比較例 30	NVC	260	60

【0097】\* a 成分 [A] と [B] の合計に基づく百分率

\* b 成分 [A] と [B] の合計 100 重量部に対する割合

\* c ノッチ付きアイソット衝撃強度 (kg・cm/cm)

\* d 目視による観察

\* e 成分 [A], [B], [C] の合計量 100 重量部に対して MBS エラストマー (C223/三菱レーヨン (株) 製) 8 重量部添加。

\* f 実施例 12 に準じて MBS エラストマー (C223/三菱レーヨン (株) 製) 8 重量部添加

\* g 基盤目剥離 (剥がれた基盤目の数/基盤目 100 個)

\* h 目視による観察

\* i ABS-1 とホ含-7 とを NVC (220℃) にて先練り後、PC-3 とブレンド

\* j 実施例 9 に準じて、ABS-1 とマ変-2 とを先練り。

## 【0098】

【発明の効果】本発明によれば、ゲル成分の少ないホルムアミド基含有共重合体を、エンジニアリングプラスチックと汎用樹脂の混合系に配合することによって、両者の混和性を高め、剥離や外観不良等の問題を生ずること

なく、衝撃強度、特に面衝撃強度とアイソット衝撃強度に優れ、しかも耐候性や耐溶媒性にすぐれた樹脂組成物を提供することができる。したがって、本発明の樹脂組成物は、自動車内装材、OA機器のハウジング材、家電製品等に幅広くかつ有効な利用が期待される。

---

フロントページの続き

(72)発明者 杉田 泰久  
千葉県市原市姉崎海岸1番地1 出光石油  
化学株式会社内

(72)発明者 太田 勝寿  
千葉県市原市姉崎海岸1番地1 出光石油  
化学株式会社内